



Étude et optimisation de l'émission et de l'extraction de lumière des nanofils semiconducteurs grand gap : application à des dispositifs électroluminescents

Anne-Line Henneghien

► To cite this version:

Anne-Line Henneghien. Étude et optimisation de l'émission et de l'extraction de lumière des nanofils semiconducteurs grand gap : application à des dispositifs électroluminescents. Physique [physics]. Université de Grenoble, 2010. Français. NNT : . tel-00558359v2

HAL Id: tel-00558359

<https://theses.hal.science/tel-00558359v2>

Submitted on 24 Jan 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : Physique appliquée

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée et soutenue publiquement par

HENNEGHIEN ANNE-LINE

le 15 décembre 2010

Étude et optimisation de l'émission et de l'extraction de lumière des nanofils semiconducteurs grand gap : application à des dispositifs électroluminescents

Thèse dirigée par Gérard Jean-Michel et codirigée par Désières Yohan

Thèse préparée au sein du CEA-Léti (Laboratoire Ingénierie pour la NANophotonique) dans l' École Doctorale
de Physique

Devant le jury composé de

Rapporteurs :	Gilles Lerondel	Professeur d'université Université de technologie de Troyes - LNIO
	Hervé Rigneault	Directeur de recherche Institut Fresnel - MOSAIC
Examineurs :	Taha Benyattou	Directeur de recherche INSA - Institut des Nanotechnologies de Lyon
	Kuntheak Kheng	Professeur d'université Université Joseph Fourier - SP2M
Co-encadrant :	Yohan Désières	Ingénieur de recherche CEA Léti Minatec - LINA
Directeur :	Jean-Michel Gérard	Directeur de recherche CEA-CNRS Groupe "Nanophysique et Semiconducteurs,"

Remerciements

Je remercie Jean-Michel Gérard d’avoir dirigé mon travail de thèse. Je remercie Yohan Désières pour m’avoir proposé cette thèse et pour son encadrement tout au long de ces trois années.

Je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements à Gilles Lerondel, Hervé Rigneault, Kuntheak Kheng et Taha Benyattou, pour avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Et je remercie tout particulièrement l’ensemble du laboratoire LINA et de l’équipe de Carnot Eclairage avec lequel le travail a toujours été un plaisir.

Je remercie également l’équipe du SP2M à l’INAC pour sa disponibilité pour répondre à mes questions et pour les différents échantillons de nanofils. J’ai une attention particulière pour Bruno Gayral et Joël Eymery pour leurs encouragements et leur écoute tout au long de ma thèse.

Merci aussi à Ségolène, Alexandre, Salim, Roch, Clément et tous les autres ! Je finirais en remerciant les copains et tous les membres de mon arbre généalogique ramifié ainsi que Mathieu.

Table des matières

1	Introduction	1
2	Contexte	3
2.1	Introduction	4
2.2	Les LEDs pour l'éclairage	5
2.2.1	Le fonctionnement des LEDs blanches	5
2.2.2	Les performances	6
2.2.3	Les atouts et les limites des LEDs pour l'éclairage	11
2.3	Les nanofils	13
2.3.1	Les atouts des nanofils	13
2.3.2	Types de LED	14
2.3.3	Fils observés pendant la thèse	19
2.4	Conclusion	21
3	Le nanofil unique	23
3.1	Introduction	24
3.2	La lumière guidée	25
3.2.1	Modes guidés d'une fibre à saut d'indice	25
3.2.2	Propriétés intéressantes pour les LEDs à nanofil	29
3.2.3	Extraction des modes guidés	31
3.2.4	Directivité	37
3.3	Les modes de galerie	38
3.3.1	Généralités	38
3.3.2	Propriétés	40
3.4	Émission spontanée	41
3.4.1	Définition de la source	41
3.4.2	Cas d'un puits quantique axial	42
3.4.3	Cas d'un puits quantique radial	46
3.5	L'extraction de lumière	47
3.5.1	Cas d'un puits quantique axial	49
3.5.2	Cas d'un puits quantique radial	50
3.6	Vérifications expérimentales	51
3.6.1	Étude du champ lointain de micropilier de <i>GaAs</i>	52
3.6.2	Caractérisation de micro-photoluminescence sur des fils uniques de <i>GaN</i>	55
3.7	Limites	64
3.8	Conclusion	67
4	Ensembles de nanofils denses et désordonnés	69
4.1	Introduction	70
4.2	Description des échantillons	70
4.2.1	Échantillon 1111	70

4.2.2	Échantillon 1004	72
4.3	Premiers résultats expérimentaux	73
4.3.1	Modélisation isotrope	73
4.3.2	Réflectivité en incidence normale et en longueur d'onde	75
4.3.3	Expérience de goniométrie	78
4.4	Introduction de l'anisotropie	81
4.4.1	Nouveau calcul des lois de transmission et réflexion en milieu anisotrope	81
4.4.2	Choix de la modélisation des indices anisotropes des fils	87
4.4.3	Études expérimentales	89
4.5	Extraction de lumière	95
4.5.1	Émission d'un dipôle dans une couche anisotrope	95
4.5.2	Couches de nanofils droits semi-infinis	96
4.5.3	Couches de nanofils droits de taille finie	100
4.5.4	Design d'une géométrie de LED à nanofils optimale d'un point de vue de l'extraction	102
4.6	Conclusion et discussion des limitations des modèles mis en œuvre	108
5	Vers les réseaux de nanofils organisés	111
5.1	Introduction	112
5.2	Les effets physiques liés à l'introduction d'un cristal photonique et leurs potentiels pour les LEDs	112
5.2.1	Structuration peu profonde	112
5.2.2	Structuration profonde	119
5.3	Les outils mis en place	122
5.3.1	RCWA	122
5.3.2	Diagramme de bande	124
5.3.3	Émission dipolaire	131
5.4	Conclusion	138
6	Conclusion	141
A	Annexes	143
A.1	FDTD	144
A.2	Comparaison fils hexagonal et circulaire	145
A.2.1	Modal properties	145
A.2.2	Reflection	146
A.2.3	Spontaneous emission	147
A.2.4	Conclusion	150
A.3	Influence d'une gaine métallique sur les modes guidés d'un fil unique	151
A.3.1	Les plasmons cylindriques	151
A.3.2	Exemples	152
A.3.3	Conclusion	153
A.4	Fils de GaAs	154
A.5	Notations dans un cristal photonique	156
A.6	Procédé de fabrication d'un cristal photonique <i>GaN</i> par photolithographie au CEA-LETI	157
	Bibliographie	158

INTRODUCTION

Les diodes électroluminescentes (light emitting diodes en anglais (LEDs)) existent depuis plus de 50 ans mais leur véritable percée n'est effective que depuis les 20 dernières années. Depuis le début du siècle les LEDs de haute puissance ont commencé à rentrer sur le marché de l'éclairage sous ses différentes formes (signalisation, affichage, lampes,...) en remplaçant au fur et à mesure les dispositifs plus conventionnels à incandescence ou à décharge. Ce progrès est en partie dû aux avancées sur l'efficacité des diodes bleues et blanches à base de nitrure qui sont en plein essor industriel actuellement.

Les LEDs ont de nombreux avantages comme une longue durée de vie, une petite taille, une faible consommation ou un faible temps de réponse. Cependant leur compétitivité par rapport aux autres sources est encore limitée en raison de leur coût de fabrication important et de l'aspect froid de la couleur émise. Leur efficacité lumineuse fait également partie des points à améliorer pour certaines gammes de longueurs d'onde. Cette efficacité dépend notamment de l'émission de la lumière dans la structure et de l'extraction des photons. L'extraction de lumière traduit la capacité des photons générés dans le semiconducteur à sortir dans l'air. Les LEDs bleues ou blanches actuelles sont généralement constituées à base de nitrure de gallium (GaN) sous la forme d'un multi-couche planaire. La grande différence d'indice de réfraction entre le matériau composant la LED ($n = 2.45$ pour le GaN) et l'air limite l'extraction par face à seulement 5%. Différentes techniques sont mises en œuvre pour augmenter ce rendement qui peut atteindre 80%.

Le travail de cette thèse a été conduit dans le cadre du projet Carnot éclairage du CEA Léti. Celui-ci a pour but d'explorer le potentiel de filières alternatives à celles des LEDs planaires à base de GaN . Une des filières proposées est les LEDs à nanofils à base de GaN ou d'oxyde de zinc (ZnO), ce nouveau concept en marge du procédé actuel révolutionne les règles de conception des LEDs.

Les diodes blanches actuelles ayant bénéficié de nombreuses années d'optimisation, il est légitime de se demander comment les LEDs à nanofils pourraient dépasser les performances de ces dispositifs. L'avantage des nanofils pour les LEDs est que la forme du dispositif autorise une surface libre importante qui devrait permettre une relaxation facilitée des contraintes et ainsi diminuer la densité de défauts dans les hétérostructures tout en permettant une extension de la gamme de longueurs d'onde d'émission. En effet, une des limitations des nitrures dans les structures planaires est leur très forte densité de défauts structuraux. De plus il existe des domaines comme le proche ultra-violet (UV) ou l'émission dans le vert pour lesquels les structures planaires

ont un mauvais rendement en raison d'une trop grande quantité de défauts cristallins. Par ailleurs les nanofils ont des prédispositions naturelles à une bonne extraction de la lumière vers l'extérieur. Le développement de LEDs à nanofils est alors justifié.

Les études réalisées durant la thèse ont été centrées sur la compréhension et l'optimisation de l'émission et de l'extraction de la lumière dans des LEDs à base de nanofils. Trois organisations particulières de nanofils ont été ainsi examinées. Le premier cas correspond à une structure simple : le nanofil unique. L'idée associée à cette structure est d'utiliser les propriétés de guidage de la lumière le long du nanofil. Un second concept également intéressant consiste à rapprocher les fils entre eux afin d'augmenter la surface émettrice par unité de surface. Les LEDs à nanofils actuellement réalisées au sein du projet Carnot vont dans ce sens. Au contraire des fils uniques, les fils sont très denses, de petits diamètres et avec un faible espace inter-fils. Ils sont de plus désorganisés. Enfin une dernière organisation intermédiaire a été envisagée. Les fils précédemment uniques ont été rapprochés et organisés de manière périodique. La structure ainsi réalisée correspond à un cristal photonique. De tels dispositifs ont déjà été utilisés en surface des LEDs *GaN* classiques afin d'améliorer l'extraction lumineuse et la directivité. Les nanofils présentent en plus l'avantage de pouvoir structurer le semiconducteur sur toute sa hauteur. La croissance de nanofils organisés en réseau commence à être maîtrisée aujourd'hui via la croissance localisée sur un substrat structuré.

Le second chapitre après l'introduction de cette thèse décrit le contexte du travail sur les LEDs pour l'éclairage. Les avantages et les inconvénients des dispositifs actuels seront détaillés afin de les comparer avec ceux des nanofils. Ensuite un état de l'art des LEDs à nanofil *GaN* et *ZnO* sera exposé avant de présenter les nanofils étudiés expérimentalement avant dans le cadre de cette thèse.

Le troisième chapitre porte sur l'étude des nanofils uniques. Après avoir décrit les propriétés des modes existants dans ce type de dispositif, l'émission de lumière et son extraction peuvent être expliquées et les informations importantes pour un design sont ainsi établies pour les deux types de LEDs à nanofils (axiale et radiale).

Le quatrième chapitre étudie des structures désorganisées qui peuvent être modélisées sous la forme de couche d'indice effectif. Des vérifications expérimentales valideront un modèle anisotrope qui sera ensuite utilisé pour estimer le rendement d'extraction de ces LEDs en fonction de la géométrie des nanofils et de la nature du substrat et du superstrat.

Le cinquième chapitre présente la configuration de nanofils organisés. Dans ce cas, les nanofils sont disposés périodiquement les uns par rapport aux autres de manière à réaliser un cristal photonique. La périodicité va modifier singulièrement la manière de résoudre le problème de l'extraction de lumière. Ce chapitre est différent des deux précédents car il ne propose pas directement des éléments de réponses mais plutôt des perspectives de travail. Les phénomènes physiques régissant le comportement de la lumière seront présentés afin de cerner les potentiels de ces structures pour les LEDs. Ensuite les besoins puis les outils théoriques utiles pour réaliser des designs de LEDs à nanofils seront décrits avant d'illustrer leur intérêt par des exemples.

CONTEXTE

Résumé.

Ce premier chapitre rassemble l'état de l'art actuel des LEDs blanches et des LEDs à nanofils à base de semiconducteur grand gap. Les avantages et les inconvénients de ces deux types de dispositifs sont présentés définissant ainsi certains termes importants dans le cadre de la thèse.

2.1 Introduction

Commençons par quelques chiffres importants sur le marché de l'éclairage. Celui-ci consomme en moyenne 19% de la production d'électricité mondiale (l'électricité représente 16% de la production d'énergie). 16 milliards de lampes sont en moyenne fabriquées par an ce qui représente un chiffre d'affaire annuel de 25 milliards d'euros selon le professeur Zissis (Zissis, 2007).

Au début de cette thèse, deux technologies dominaient le domaine de l'éclairage : les lampes classiques à incandescence et celles à décharge électrique. Les lampes fluo-compactes utilisées en éclairage domestique font parties de cette dernière catégorie.

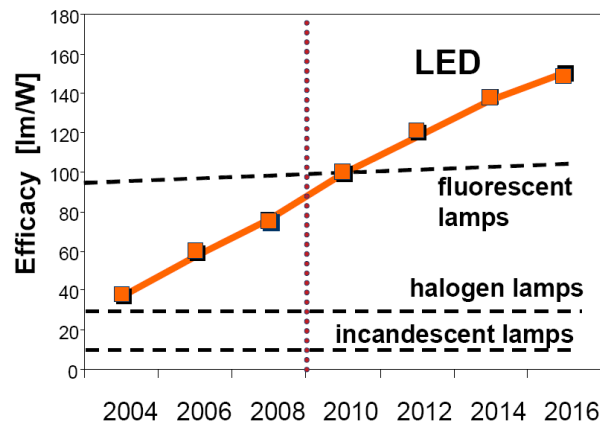


FIGURE 2.1 – Évolution de l'efficacité quantique externe des lampes dans le visible, (Hahn, 2009).

L'efficacité lumineuse de ces sources semblent avoir atteint ses limites d'après la figure 2.1. En effet les lampes à incandescence ordinaires semblent stagner entre 10 et 15 lumens par watt avec un rendement de seulement 5% car la plupart de l'énergie est transformée en chaleur. Les lampes fluorescentes gardent un rendement de 100 lumens par watt depuis les années 70 (l'unité lumen par watt sera expliquée par la suite). Leur rendement est meilleur que les lampes à incandescences, il atteint jusqu'à 25% pour les lampes à décharge mais moins de 20% pour les fluo-compactes qui contiennent également un élément toxique : le mercure (Humphreys, 2008). Au contraire l'efficacité des diodes électroluminescentes (en anglais LEDs pour "Light Emitting Diodes") n'a fait qu'augmenter avec une forte croissance (courbe orange sur la figure 2.1).

Malgré ses mauvais rendements, les lampes à incandescence qui ont un prix d'achat très faible par rapport aux autres systèmes, représentaient en France en 2002, 35% des lampes existantes ; au niveau mondial le chiffre augmente jusqu'à 70%.

Les domaines d'applications des LEDs sont nombreux comme on peut le voir sur la figure 2.2 et dépendent de la puissance et de la couleur du dispositif. L'éclairage nécessite le plus souvent une lumière blanche avec un flux important, les LEDs seront dans ce cas de haute puissance (50-250 lumens) voir de très haute puissance (plus de 250 lumens).

Aujourd'hui les LEDs de haute puissance sont utilisées principalement dans les dispositifs nomades, l'affichage et l'automobile. Leur part de marché dans le domaine de l'éclairage n'est que de l'ordre de 6%.

Commercialiser un dispositif ayant à la fois un bon rendement lumineux et un coût de fabrication faible est par conséquent un enjeu à la fois écologique et économique. La communauté européenne a ainsi décidé d'interdire la commercialisation des lampes à incandescence à partir du mois de septembre 2009 pour des raisons d'économie d'énergie (La commission des communautés européennes, 2009). Depuis cette date, l'intérêt des professionnels de l'éclairage pour les LEDs a considérablement augmenté.

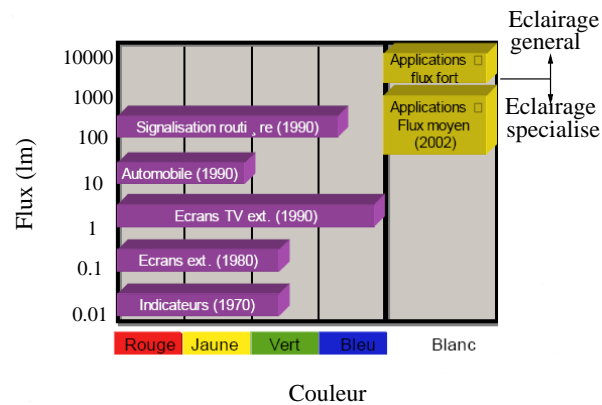


FIGURE 2.2 – Domaines d'application des diodes électroluminescentes en fonction de leur couleur et de leur flux (Mottier, 2008).

Dans ce chapitre les LEDs blanches pour l'éclairage seront décrites tout d'abord. Les détails de leur fonctionnement et de leurs performances seront présentés. Différents termes importants dans le cadre de ce travail seront ainsi définis. Ensuite une seconde partie introduira les nanofils et leurs avantages par rapport aux structures planaires des LEDs actuelles. Les différents types de LEDs à nanofils existantes seront présentés. Je terminerai en décrivant les nanofils étudiés expérimentalement durant ces trois années de thèse.

2.2 Les LEDs pour l'éclairage

2.2.1 Le fonctionnement des LEDs blanches

Le procédé d'émission lumineuse dans une diode repose sur l'émission de photons par recombinaison radiative de paires électron-trou injectées électriquement dans un puits quantique comme représenté sur la figure 2.3. Le superstrat est le milieu extérieur supérieur dans lequel sort la lumière, respectivement le substrat est le milieu inférieur. Le détail du fonctionnement d'une LED n'est pas présenté dans ce chapitre, on pourra se référer à l'ouvrage (Schubert, 2006). Dans ce paragraphe, trois méthodes permettant de réaliser une LED blanche à partir d'une ou de plusieurs LEDs vont être décrites.

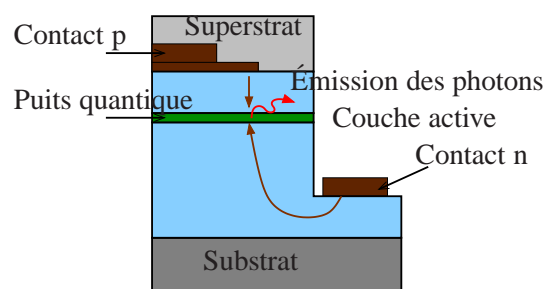


FIGURE 2.3 – Émission de lumière dans une hétérostructure simple. Les flèches marron représentent les flux de porteurs de charges. La flèche rouge représente l'émission des photons suite aux recombinaisons radiatives des paires électron-trou.

La première méthode consiste à combiner une diode émettant une longueur d'onde courte λ_1 avec un luminaire émettant une longueur d'onde complémentaire plus longue λ_2 . Cette technique repose sur le principe suivant : si deux photons de longueurs d'onde complémentaires arrivent simultanément sur l'oeil humain, cela provoque une sensation de lumière blanche. Ainsi l'émission de lumière par une jonction bleue de nitrure de gallium-indium ($InGaN$) avec un phosphore jaune de $YAG - Ce$ est perçue de couleur blanche. Ce principe

est utilisé par de nombreux constructeurs tel que Nichia, CREE ou encore Lumineds pour produire en série des diodes blanches de forte puissance.

Cette technique a un inconvénient majeur, la lumière blanche obtenue est dite "froide". Ce terme sera expliqué dans la partie 2.2.2.3. Pour obtenir un blanc plus chaud, une couche de phosphore qui produit un rayonnement rouge doit être ajoutée mais cette couche réduit fortement le rendement.

La deuxième méthode utilise une diode émettant dans le proche ultraviolet (UV) ou dans le violet, couplée à des phosphores qui transforment la lumière UV en visible. Le rendu de couleur obtenu sera de meilleure qualité que la méthode précédente car la stimulation des luminophores est plus efficace. De plus cette technique permet l'élimination de la teinte bleue et donc une lumière plus chaude. Actuellement le rendement des LEDs UV est trop faible pour obtenir une LED blanche de haute puissance. Si la recherche permet d'augmenter l'efficacité du dispositif, cette technologie pourrait devenir la technique dominante dans le marché des LEDs pour l'éclairage.

La troisième méthode consiste à combiner une diode de chacune des couleurs principales (rouge, vert et bleu). La synthèse produit de la lumière blanche dont la température dépend de la proportion de chacune des composantes. Cette technologie a l'avantage de ne pas utiliser de luminophores qui diminueraient le rendement. En revanche on peut s'attendre à un vieillissement non homogène des LEDs et donc à une modification de la couleur avec le temps. Par ailleurs le coût de ce dispositif est important (alimentation électrique différente pour chaque couleur,...).

2.2.2 Les performances

2.2.2.1 Le rendement lumineux

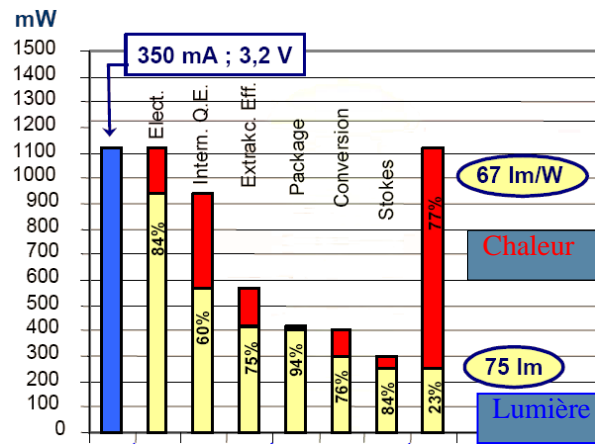


FIGURE 2.4 – Différents rendements de la LED Dragon-1W d'Osram en 2007 (Zehnder, 2007). Seule une faible partie de la puissance électrique injectée est transformée en lumière, la majeure partie de la puissance est émise sous forme de chaleur.

On définit le rendement global η_{gl} d'une LED (wall-plug efficiency en anglais) comme le rapport entre la puissance lumineuse émise sur la puissance électrique injectée. Comme on peut le constater sur la figure 2.4, ce rendement peut être décomposé en plusieurs termes :

$$\eta_{gl} = \eta_{elec} \times \eta_{int} \times \eta_{ext} \times \eta_{pack} \times \eta_{conv} \quad (2.1)$$

η_{elec} représente la fraction d'électrons injectés qui atteignent l'hétérojonction. Une partie de l'énergie électrique peut en effet être perdue au niveau des contacts sous forme de chaleur par effet joule.

Le rendement quantique interne η_{int} caractérise l'efficacité de conversion des paires électron-trou (au niveau de la jonction) en photons par électroluminescence. Ce phénomène peut être limité par les recombinaisons non

radiatives. Dans ce cas les porteurs de charge se recombinaient en dissipant l'énergie sous forme de chaleur. Le rendement η_{int} est défini par :

$$\eta_{int} = \frac{\tau_{NR}}{\tau_{NR} + \tau_R} \quad (2.2)$$

avec τ_{NR} la durée de vie non-radiative et τ_R , la durée de vie radiative. Pour maximiser η_{int} , on peut ainsi jouer sur la qualité du matériau pour réduire la densité de centres de recombinaison non radiatifs, ou bien encore limiter l'efficacité de ces centres non radiatifs (par exemple en jouant sur la localisation des porteurs). La LED *Golden Dragon* + d'Osram a ainsi un rendement η_{int} de 80% (Hahn, 2009).

Le rendement d'extraction η_{ext} est le rapport entre le nombre de photons extraits hors de la LED et le nombre de photons émis. La problématique de cette thèse portant sur l'extraction lumineuse, ce sujet sera détaillé dans le paragraphe suivant. Le rendement quantique externe est : $\eta_{int} \times \eta_{ext}$.

η_{pack} représente la qualité du packaging de la LED, la chaleur doit notamment être évacuée efficacement grâce à des ailettes de refroidissement par exemple.

Dans une application à l'éclairage, des phosphores peuvent être utilisés pour convertir les photons de haute énergie en photons d'énergie plus basse afin d'obtenir une lumière blanche. η_{conv} représente dans ce cas l'efficacité de conversion des photons. Des pertes peuvent être dues soit au décalage en longueur d'onde entre les bandes d'absorption et celles d'émission des phosphores (effet Stokes), soit à une absence de conversion.

La réponse de l'œil humain à la lumière dépend de la longueur d'onde d'émission : la vision humaine est plus sensible à la couleur verte qu'au rouge ou au bleu. Pour obtenir la puissance lumineuse (en lumen) d'une LED pour l'éclairage il faut multiplier la puissance émise (en W) par un facteur correctif $V(\lambda)$ qui prend en compte la réponse de l'œil. Ainsi le rendement lumineux d'une LED est défini comme le rapport entre la puissance lumineuse et la puissance électrique injectée, l'unité est le lumen par watt (lm/W).

D'après la figure 2.4, le rendement global η_{gl} était encore faible en 2007. En 2009, ce chiffre a été augmenté jusqu'à 60% en laboratoire (Hahn, 2009). Dans tous les cas la quantité de chaleur créée lors du fonctionnement n'est pas négligeable. Une mauvaise évacuation de cette chaleur peut être néfaste d'où l'importance du packaging. En effet la valeur de la température de jonction de la LED a un impact important sur la durée de vie comme il est montré sur la figure 2.5. La chaleur modifie également la longueur d'onde d'émission qui augmente de 0.1nm par degré Celsius (Mottier, 2008).

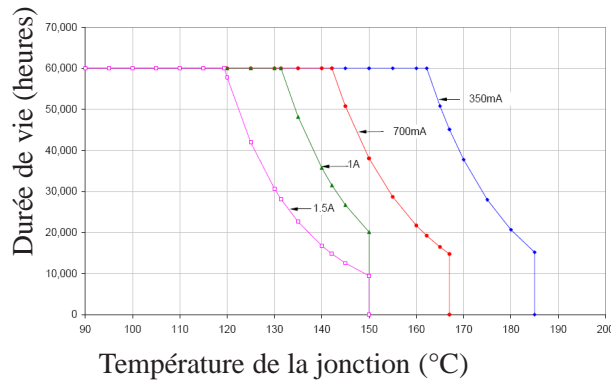


FIGURE 2.5 – Dépendance de la durée de vie d'une LED en fonction du courant et de la température de jonction (Lumileds). Une température de jonction élevée entraîne pour un courant donné une durée de vie plus courte du dispositif à partir d'une valeur seuil de température.

2.2.2.2 L'extraction de lumière

Une des problématiques de cette thèse a porté sur la compréhension et l'optimisation de l'extraction de lumière dans des structures à base de nanofils. C'est une étape importante pour obtenir des LEDs à fort rendement car comme on peut le constater sur la figure 2.4, les deux plus mauvais rendements des LEDs sont le rendement d'extraction (75% en 2007) et le rendement quantique interne (60%).

Le problème fondamental de l'extraction de lumière générée dans les matériaux de fort indice optique tels que le *GaN* ou le *ZnO* (typiquement $n = 2.45$) est le piégeage de celle-ci dans la structure. En effet une grande part de la lumière est réfléchi à l'interface entre le semiconducteur et le milieu de sortie (superstrat) constitué d'air, de silice ou d'époxy par exemple.

En effet selon les lois d'optique géométrique de Snell-Descartes, un rayon lumineux se propageant dans un milieu d'indice n_1 peut être transmis dans un autre milieu d'indice $n_2 < n_1$, si l'angle d'incidence du rayon est inférieur à un angle critique θ_c représenté sur la figure 2.6 et défini par :

$$\theta_c = \sin^{-1} \left(\frac{n_2}{n_1} \right) \quad (2.3)$$

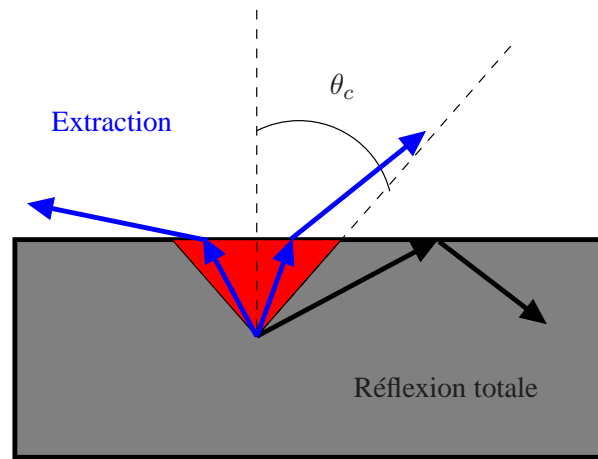


FIGURE 2.6 – Définition du cône de lumière dans un semiconducteur. La lumière émise dans une direction contenue dans le cône de lumière est extraite hors du semiconducteur aux coefficients de transmission près, tandis que la lumière émise hors du cône de lumière est en réflexion totale et reste piégée dans la couche.

Au delà de cet angle critique, il y a réflexion totale (fig. 2.6). Le cône d'extraction comprend tous les rayons tels que $\theta \leq \theta_c$. En prenant en compte les coefficients de réflexion et de transmission dans le cône de lumière, on obtient dans le cas du *GaN*, un rendement d'extraction par face vers l'air ($n_2 = 1$) de 5%, vers la silice ($n_2 = 1.5$) de 12.5 % et vers le saphir ($n_2 = 1.8$) de 19%.

Le matériau n'étant pas parfait, la lumière non transmise ne reste pas piégée infiniment dans la structure. Les mécanismes de pertes optiques suivants interviennent :

- ▷ absorption par les porteurs libres,
- ▷ absorption par les couches à faible bande interdite,
- ▷ absorption par les contacts métalliques,
- ▷ ré-absorption par la couche active elle-même.

En général, la lumière n'atteint pas les côtés de la structure et seuls les rayons lumineux émis vers le haut peuvent être extraits. Des ordres de grandeurs de ces absorptions sont donnés dans (Liu et al., 2010).

La recherche a permis d'augmenter le rendement d'extraction en complexifiant la structure. Krames dans son article (Krames et al., 2007), décrit l'évolution du design de l'extraction lumineuse des LEDs classiques. Les approches les plus simples s'appuient sur une solution d'optique géométrique ou une solution de micro-optique.

La solution d'optique géométrique comprend par exemple l'utilisation de :

- ▷ une couche métallique en face arrière pour réfléchir vers le haut la lumière émise vers le bas,
- ▷ une couche antireflet pour augmenter l'extraction vers le superstrat,

- ▷ un encapsulant de forme sphérique au dessus de la couche active (dôme d'époxy) comme interface entre l'air et la puce qui est alors placée au centre de la sphère,
- ▷ une forme de puce pyramidale pour contourner le problème du cône de lumière (Krames et al., 1999).

La micro-optique consiste en une micro ou nanostructuration de l'interface avec le superstrat soit en rugosifiant la surface (Fujii et al., 2004), soit en utilisant des effets photoniques (LEDs à microcavité (Ochoa, 2001), LEDs à cristaux photoniques (David, 2006)). Ainsi la rugosification associée à un miroir en face arrière permettrait selon Krames d'avoir un rendement d'extraction de 80% pour la filière *GaN*.

Les cristaux photoniques consistent en une nanostructuration périodique de l'indice de réfraction à une, deux ou trois dimensions dont la période est proche de la longueur d'onde d'émission. Comme l'a souligné Yablonovitch lors de la conférence PECS VIII, les LEDs à cristaux photoniques sont une solution plus chère que la rugosification mais qui a de nombreux avantages. En plus de l'augmentation de l'extraction, le cristal photonique permet dans certains cas une modification du taux d'émission spontanée par effet Purcell. Par ailleurs cette solution permet de s'affranchir de l'utilisation d'encapsulants. Ces derniers peuvent s'opacifier sous un flux lumineux intense (Wierer et al., 2009). Ce sujet sera abordé plus en détail dans le chapitre 5.

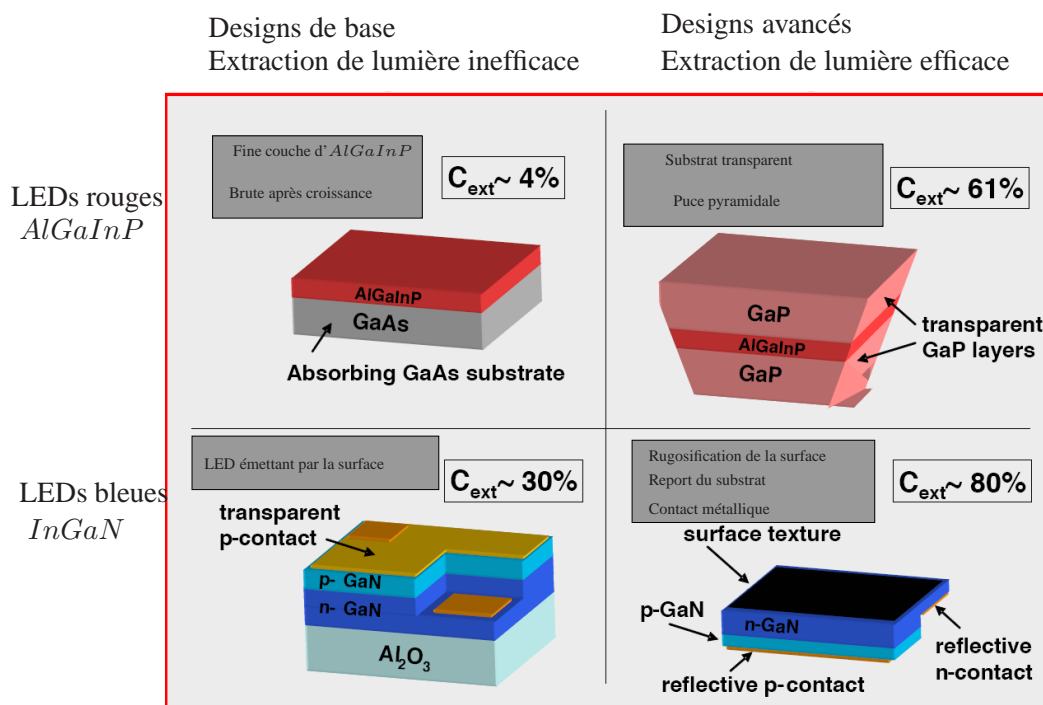


FIGURE 2.7 – Designs de base et avancés utilisés pour les LEDs dans le visible. La colonne de gauche correspond à la structure de base ayant un faible rendement d'extraction, la colonne de droite correspond à la technique utilisée à l'état de l'art qui permet une bonne extraction (Phillips et al., 2007). Dans le cas des LEDs bleues à base d'*InGaN*, le meilleur rendement est obtenu grâce à une rugosification de la surface, un report du substrat par lift-off laser et une prise de contact métallique.

Les structures permettant d'obtenir les meilleurs rendements d'extraction pour les filières *AlGaInP* et *InGaN* sont présentées sur la figure 2.7. La filière *AlGaInP* correspondant aux LEDs rouges utilise ainsi uniquement des solutions géométriques tandis que la filière *InGaN* pour les LEDs bleues combine l'utilisation de contacts métalliques en face arrière comme réflecteurs grâce à un report de substrat par lift-off, avec une rugosification de surface pour modifier le cône de lumière.

Ces techniques permettent d'augmenter nettement le rendement d'extraction par rapport à la structure de base. L'inconvénient de ces améliorations est la multiplication du nombre d'étapes technologiques (décrites dans (Krames et al., 2007)) ce qui implique une augmentation du coût de réalisation de la LED.

2.2.2.3 Couleur et brillance

Le rendement lumineux comme il a été vu auparavant permet de définir la qualité de conversion de l'énergie électrique en énergie lumineuse. Cependant dans le cadre de l'éclairage, il faut également prendre en considération d'autres critères pour juger de la capacité de la source lumineuse à illuminer des objets avec des couleurs satisfaisantes pour l'œil humain : la brillance, la température d'une source et le rendu des couleurs.

La brillance, également appelée luminance d'une source dans une direction donnée mesure le flux lumineux émis par ce point, ramené à l'angle solide d'émission et à l'aire de la source. L'œil humain étant sensible à la puissance émise par unité de surface et non à la puissance totale émise, une source dont la surface d'émission est concentrée apparaîtra plus brillante que la même source utilisée avec un diffuseur.

Suivant l'application de la LED, une forte directivité peut être désirée (pico-projecteur, couplage à une fibre optique,...). La directivité correspond à l'intégrale de la brillance sur l'angle solide désiré.

Dans le domaine des sources pour l'éclairage, il est courant d'utiliser des termes tels que source chaude ou froide. La lumière de référence de l'œil humain est la lumière du jour et les variations de la lumière du jour sont très semblables à celles du corps noir. Le corps noir est une source de rayonnement théorique qui a pour propriété d'émettre sous forme de rayonnement toute l'énergie qu'il reçoit. Son rayonnement ne dépend que de sa température que les lois physiques permettent de relier à son spectre d'émission et donc à sa couleur. La table 2.1 présente la correspondance entre la température du corps noir et l'impression colorée qu'elle procure. La figure 2.8 montre la couleur correspondante à différentes températures. Les LEDs obtenues avec la première méthode décrite dans la partie 2.2.1, ont une température de 5500K environ, et 3200K avec la couche de phosphores émettant dans le rouge.

Impression colorée	Température de couleur
chaude	$T \leq 3300K$
neutre	$3300K \leq T \leq 5300K$
froide	$T > 5300K$

TABLE 2.1 – Relation entre impression colorée et température du corps noir.

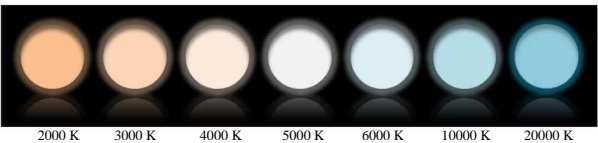


FIGURE 2.8 – Exemple de représentation visuelle de températures de couleur (Pousset, 2009).

La qualité de la lumière superficielle se juge en référence à la lumière naturelle. Pour une application d'éclairage, la couleur de la lumière (la température) mais également le rendu des couleurs des objets sous cette lumière doit être maîtrisé.

L'indice de rendu de couleur (IRC) est la capacité d'une source de lumière à restituer les différentes couleurs des objets dans le spectre visible. Pour mesurer l'IRC d'une source, une collection d'échantillons colorés est éclairée successivement par la source et par la référence (le corps noir) à la même température de couleur . Les couleurs des échantillons sont comparées. Un grand IRC correspond à une source proche de la référence (100 au maximum pour la lumière du soleil).

La table 2.2 résume l'IRC des principales sources lumineuses. Les LEDs blanches obtenues par l'association de LEDs bleues avec des phosphores ont un IRC médiocre, l'ajout de la couche de phosphore émettant dans le rouge améliora l'IRC. Les LEDs UV utilisant des phosphores ont un très bon IRC. La méthode associant différentes LEDs aura un IRC qui dépendra de la composition des couleurs. Des valeurs supérieures à 80

peuvent être atteintes.

IRC	typique Sources lumineuses
100	Lumière du jour
100	Lampe à incandescence
<75	LED bleue + phosphores
90-100	LED UV +phosphores
60-90	Tubes fluorescents
20-25	Sodium basse et haute pression

TABLE 2.2 – Exemple de valeurs d'indice de rendu des couleurs pour quelques sources lumineuses. Les LEDs UV associées à des phosphores ont un très grand IRC contrairement aux LEDs bleues.

2.2.3 Les atouts et les limites des LEDs pour l'éclairage

2.2.3.1 Les atouts

Les avantages des LEDs pour l'éclairage sont nombreux, on peut citer notamment :

- ▷ une forte efficacité énergétique : par exemple, la LED *Golden Dragon* + d'Osram atteint aujourd'hui la valeur de 57% de rendement global en laboratoire (Hahn, 2009). La valeur pour une utilisation normale à température ambiante sera bien sur inférieure car la température de jonction passe de 25° C en laboratoire, à 110° Celsius, ce qui diminue l'efficacité de la LED. Ces chiffres évoluent très rapidement, en effet en 2007, ce rendement atteignait seulement 23%.
- ▷ une durée de vie plus longue : les ampoules classiques peuvent être utilisées pendant 1000h, les lampes fluo-compactes pendant 10000h et les meilleures LEDs pendant 25000h. Ce temps d'utilisation plus long permet de réduire également les coûts de maintenance par exemple.
- ▷ une variation de l'intensité réalisable : les LEDs peuvent être utilisées avec un gradateur de lumière, ce qui n'est absolument pas le cas des lampes fluo-compactes .
- ▷ une alimentation en basse tension : cela permet au luminaire d'être autonome en étant alimenté sur batterie. Cette caractéristique est essentielle pour une application dans les pays émergents pour lesquels le réseau électrique est peu développé.
- ▷ une absence de rayonnements ultraviolet et infrarouge : ce paramètre est important pour une utilisation dans des musées où la conservation des objets est primordiale.

2.2.3.2 Les inconvénients

Green Gap

Les diodes *InGaN* sont très performantes dans le bleu ($\lambda \approx 450nm$). Comme on peut le constater sur la figure 2.9, la performance de ces LEDs chute très fortement quand l'émission a lieu dans le vert. La longueur d'onde d'émission d'une hétérostructure est liée aux propriétés du puits quantique ; pour passer du bleu au vert il faut augmenter la composition en indium ou augmenter l'épaisseur du puits. Dans les structures planaires, la qualité du puits quantique se dégrade lorsque la composition en indium devient trop grande. En effet la densité de dislocations devient trop importante ce qui a pour conséquence de diminuer η_{int} . Cette limite est obtenue pour des concentrations supérieures à 25% (Fuhrmann et al., 2006), ce qui correspond à la longueur d'onde de 450nm.

Pour émettre de 450 à 600nm, l'épaisseur du puits peut être augmenter et son efficacité chute également. Ce phénomène n'est pas encore totalement expliqué dans la littérature.

L'utilisation de *AlGaInP* n'est pas possible non plus car le gap devient indirect lorsque l'émission se rapproche du vert. Le terme "green gap" est utilisé pour nommer ce manque de LED verte à fort rendement.

Par ailleurs, l'indium (In) qui est aujourd'hui un élément important pour la fabrication de la majorité des LEDs blanches de puissance, est un élément rare. Son prix augmente avec les années (Mottier, 2008). On peut penser qu'à plus ou moins long terme ce paramètre influencera le prix de la LED.

Ainsi les LEDs qui ont une puissance importante sont généralement encore chères et de couleur froide. Malheureusement les lampes de couleur froide sont peu appréciées pour l'éclairage domestique en Europe. Pour obtenir des LEDs de couleur chaude plus performantes, le rendement global doit être encore amélioré. Les voies d'amélioration principales au niveau de la puce sont le dopage de la zone dopée de type p pour l'injection électrique, l'amélioration du rendement quantique interne et celle du rendement d'extraction. Par ailleurs le coût du dispositif doit également diminuer pour augmenter la compétitivité des LEDs par rapport aux autres dispositifs d'éclairage.

2.3 Les nanofils

2.3.1 Les atouts des nanofils

Les nanofils ouvrent de nouvelles perspectives aux designs optique et électrique. Ils ont par ailleurs de nombreux avantages par rapport aux structures planaires dont certains restent à vérifier expérimentalement.

Nanostructuration naturelle

Tout d'abord concernant l'extraction de lumière, une tendance actuelle pour obtenir des dispositifs performants est de nanostructurer la surface (rugosification, cristal photonique). Les nanofils sont quant à eux naturellement nanostructurés dans deux dimensions ce qui présente des avantages en terme de coût (car il y aurait moins d'étapes technologiques) et d'extraction (comme il sera vu dans la suite de ce manuscrit) : la solution pour l'extraction est ainsi mise en place dès la croissance des nanofils.

Utilisation de substrats à bas coût

Il a été vu dans le paragraphe 2.2.3 que les substrats étaient liés à la limitation des performances des LEDs (coût, défaut,...). Si le fil est suffisamment petit, les contraintes liées au désaccord de maille entre le matériau et son substrat peuvent être relaxées en surface sur les bords du nanofil. Le nanofil est donc théoriquement un matériau sans défaut ce qui se traduit par un τ_{NR} infiniment long à l'intérieur du fil et un rendement quantique interne égal à 1 mais en pratique, cela n'a pas été vérifié expérimentalement de façon fiable. Les recombinaisons en surface pourront en revanche être plus ou moins importantes.

Par conséquent il est envisageable de faire croître des nanofils sur des substrats à bas coût (silicium, verre) et/ou de grande dimension, conducteur de chaleur, de courant (un métal typiquement). Dans le cas du ZnO , le saphir et le ZnO sont les substrats les plus classiques. D'autres substrats ont été envisagés comme l'aluminium (Umar et al., 2008) ou encore le GaN et le silicium (Jang et al., 2008), ou le verre (Yuan and Zhang, 2004).

Les substrats les plus couramment utilisés pour les nanofils de GaN sont le silicium et le GaN ou encore le saphir (Sekiguchi et al., 2007).

Solution au green gap ?

Les nanofils pourraient apporter également une réponse au problème du green gap. La contrainte étant relaxée par la surface, cela permettrait d'avoir une plus grande concentration en indium tout en conservant un grand η_{int} . Cette propriété a été vérifiée expérimentalement comme montré sur la figure 2.11 (Kuykendall et al., 2007) mais elle n'a pas encore été validée par l'ensemble de la communauté scientifique.

LED UV

Deux matériaux sont ainsi envisageables pour réaliser des LEDs à nanofils, le GaN et le ZnO . Alors que le

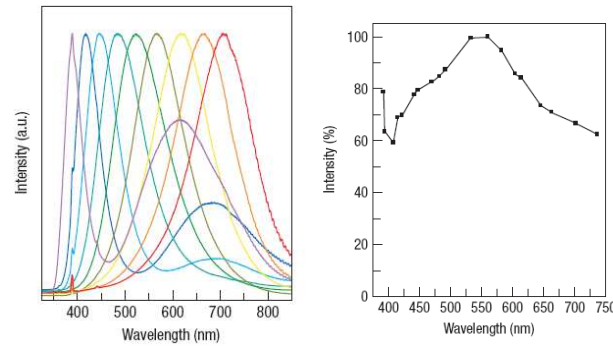


FIGURE 2.11 – Incorporation d’indium dans les nanofils (Kuykendall et al., 2007). Sur la figure de droite sont représentés des spectres normalisés de photoluminescence pour x entre 0 et 0.6 avec $In_xGa_{1-x}N$. La figure de gauche présente l’intensité réelle des pics. Une forte concentration d’indium dans les puits quantiques semble possible dans les nanofils.

premier pourrait apporter une solution au green gap, le second émettant dans le proche UV ($\lambda = 380nm$) pourrait fournir une source dans cette gamme de longueur d’onde. L’hétérostructure serait alors en $ZnMgO/ZnO$. Actuellement on ne sait pas doper positivement le ZnO . Pour contourner ce problème, certains scientifiques réalisent une jonction entre du GaN dopé p et du ZnO dopé n. Le GaN est alors une couche planaire (Chen et al., 2009; Ng et al., 2009).

2.3.2 Types de LED

Le GaN et le ZnO cristallisent le plus couramment sous la forme wurtzite qui est thermodynamiquement stable. Cette structure hexagonale est représentée sur la figure 2.12(a). L’orientation du substrat détermine l’axe de croissance du nanofil, par conséquent deux formes de nanofil peuvent être réalisées : les nanofils seront soit de section triangulaire dans le cas de l’axe a [$1\bar{1}00$], soit hexagonale dans le cas de l’axe c [0001] (figure 2.12). On se référera à (Kasap and Capper, 2007) pour la description des techniques de croissance qui seront évoquées par la suite.

Par ailleurs deux types d’hétérostructures peuvent être créées : l’hétérostructure axiale et l’hétérostructure radiale.

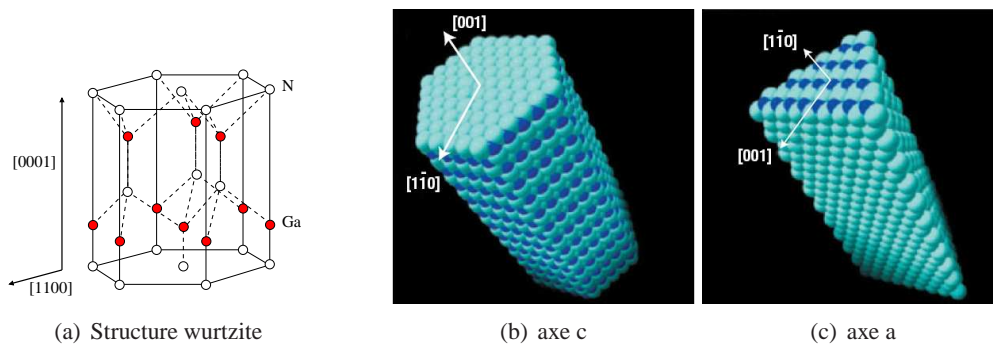


FIGURE 2.12 – La maille wurtzite du GaN à gauche. La géométrie des fils en fonction de leur axe de croissance est présentée au centre et à droite (Kuykendall et al., 2004). Suivant l’axe c , les fils sont de section hexagonale contrairement à l’axe a où les fils sont triangulaires.

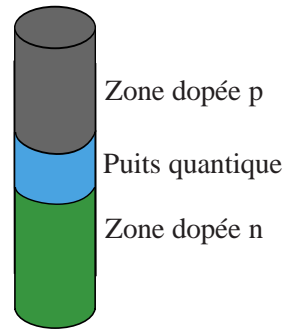


FIGURE 2.13 – LED à nanofil axiale. Le puits quantique a une section identique aux zones de type n et p l’entourant respectivement en bas et en haut.

2.3.2.1 LED axiale

Dans ce type de LED, l’hétérostructure se situe sur toute une section du fil, comme montré sur la figure 2.13. Pour des raisons de croissance, la zone dopée négativement sera systématiquement à la base du nanofil. Par conséquent la zone supérieure sera dopée positivement.

Les contacts électriques peuvent être pris à la base et au sommet du fil. Si le substrat est conducteur, il n’est pas nécessaire de réaliser une prise de contact spécifique de la partie dopée n. Il en est de même pour la partie dopée p avec un superstrat conducteur. Pour obtenir une extraction par le haut, on préférera un superstrat à la fois transparent et conducteur comme l’oxyde d’indium-étain (ITO).

Un inconvénient à ce type de LED est que la surface du puits quantique est réduite à la section du nanofil. En revanche la qualité cristalline du puits quantique sera meilleure que dans le cas de la LED radiale car la surface de relaxation de la contrainte est importante par rapport au volume du puits.

Selon Glas, il existe un rayon critique en dessous duquel aucune dislocation interfaciale ne sera introduite (Glas, 2006). En dessous de 25nm de rayon, quelques soient la hauteur du puits et la différence de paramètre de maille, il semblerait qu’il n’y a aucune dislocation. Par ailleurs, plus la hauteur du puits est réduite et le décalage de paramètre de maille faible, plus le rayon critique est important.

On trouve de nombreux exemples de ce type de LEDs dans la littérature. Dans tous les cas la croissance s’effectue suivant l’axe c. Les nanofils auront donc une section hexagonale et les puits quantiques seront tous polaires car situés dans un plan perpendiculaire à l’axe c, ce qui a certaines conséquences sur les propriétés d’émission (cf 3.4). Suivant, la technique de croissance utilisée, la densité de fils ainsi que la taille et la forme des fils peuvent fortement varier. Les structures majeures des LEDs à nanofil axiales de la communauté scientifique vont maintenant être décrites succinctement.

Kishino est un acteur majeur dans le domaine du développement des LEDs à nanofils. Il a publié de nombreux articles (Kikuchi et al., 2004, 2006; Kishino et al., 1998, 2007; Sekiguchi et al., 2008) sur des LEDs obtenues par épitaxie par jet moléculaire (molecular beam epitaxy (MBE)) (Largeau et al., 2008). Pour déposer un puits d’ InGaN il est nécessaire d’abaisser la température par rapport à celle de la croissance de la base du fil pour empêcher la diffusion d’indium. La partie dopée p est par conséquent également déposée à plus basse température ce qui a pour effet de favoriser la croissance latérale : le haut du sommet du nanofil a donc un diamètre de plus en plus grand comme montré sur la figure 2.14.

L’équipe de Kishino a également fabriqué des réseaux ordonnés de nanofils de GaN par croissance localisée sur des substrats structurés (Kouno et al., 2009).

Les dimensions typiques des nanofils obtenus par MBE sont résumés dans la table 2.3.

Kim a réalisé des hétérostructures de GaN à base de nanofil par metalorganic-hybride vapor phase epitaxy

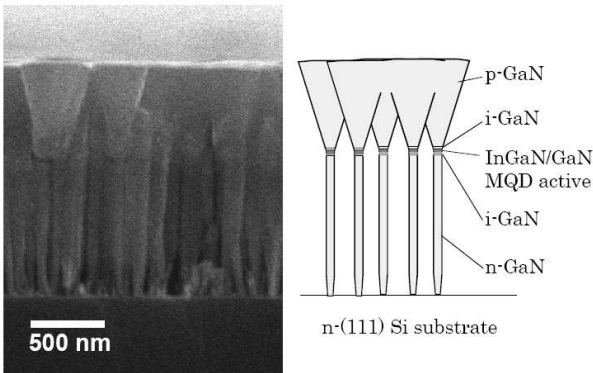


FIGURE 2.14 – Image MEB et schéma de LED à multipuits d'*InGaN* sur un substrat de silicium (Kikuchi et al., 2006). Une couche de *GaN* intrinsèque entoure les puits quantiques. Le sommet des fils est de forme conique en raison des croissances latérales lors du dépôt de la zone de type p.

Diamètre de la base	20 – 50nm
Hauteur de la zone dopée n	600 – 900nm
Diamètre supérieur	200 – 400nm
Hauteur de la zone dopée p	400 – 600nm

TABLE 2.3 – Dimensions des fils MBE

(MO-HVPE) (Kim et al., 2004). Cette technique permet d’obtenir des fils dont la partie dopée p se réduit à fur et à mesure de la croissance en raison de la baisse de température (Kim et al., 2003). Les fils semblent bien alignés et de diamètre homogène. Le diamètre de la zone dopée n est compris entre 70 et 90nm et la hauteur des fils vaut 1μm environ (Fig. 2.15).

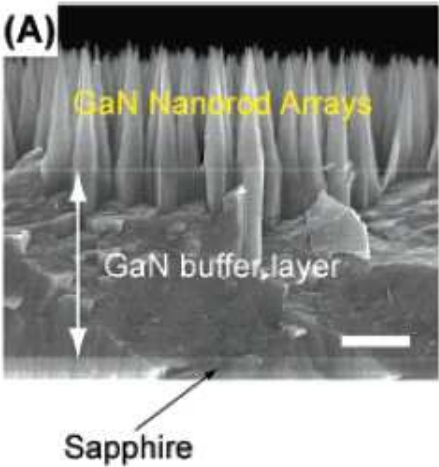


FIGURE 2.15 – Image MEB de nanofils à multipuits d'*InGaN*, échelle 500nm (Kim et al., 2004). Le sommet des fils est en aiguille.

Hersee a réalisé des homojonctions à base de nanofils de *GaN* par metal-organic chemical vapor deposition (MOCVD) (Hersee et al., 2009). La croissance est localisée et le diamètre des fils est parfaitement contrôlé (Hersee et al., 2006) contrairement aux deux exemples précédents. Comme il n’y a pas d’incorporation d’indium, la température reste la même pendant toute la croissance et par conséquent les nanofils sont parfaitement droits (Fig. 2.16). Le diamètre des fils varie entre 100 et 300nm, la longueur des nanoLEDs vaut approximativement 2.5μm et le pas entre les fils est égal à 600nm.

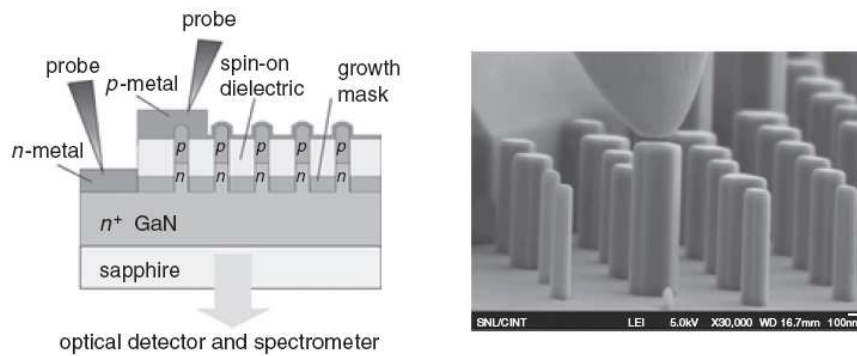


FIGURE 2.16 – Schéma et image MEB d'un réseau de LEDs à nanofils (Hersee et al., 2009). C'est une homo-jonction qui est à l'origine de l'émission de lumière. Le substrat est structuré à l'aide d'un masque.

En raison des problèmes de dopage p du ZnO , aucune LED à nanofil de ZnO n'a été fabriquée à ma connaissance. On peut cependant citer des réalisations d'hétérostructures en $ZnMgO$ avec des puits de ZnO . L'équipe de Yi (Park et al., 2002; Yatsui et al., 2004) a réalisé les nanofils présentés sur la figure 2.17. Il faut retenir que dans l'exemple contrairement aux LEDs à nanofils de GaN , la base du nanofil est en ZnO et non en $ZnMgO$.

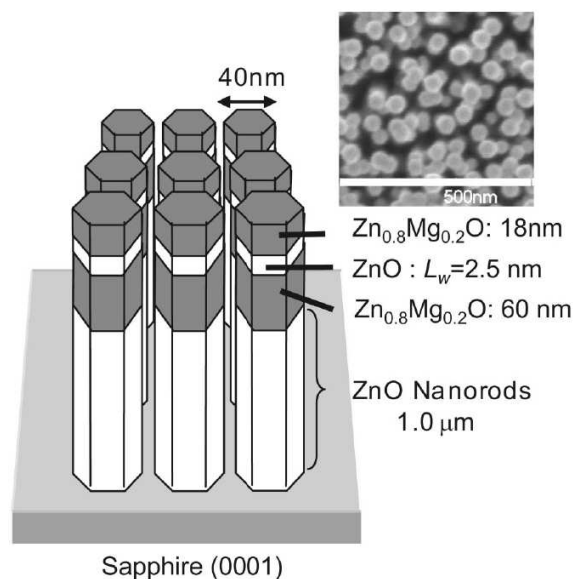


FIGURE 2.17 – Schéma et image MEB d'un réseau d'hétérostructures à nanofils à base de ZnO (Yatsui et al., 2004). La base des fils est en ZnO contrairement à la technologie GaN .

2.3.2.2 LED radiale

Les hétérostructures radiales également appelées cœur-coquille (core-shell), sont constituées d'un cœur dopé négativement et d'une coquille dopée positivement. Entre ces deux couches se trouve le (ou les) puits quantique(s) comme représenté sur la figure 2.18. Il y a beaucoup moins d'exemples de ce type de LEDs dans la littérature que pour les LEDs axiales.

La surface du puits quantique est ainsi bien plus grande que dans le cas de la LED axiale. Il y aura donc plus de lumière générée pour la même surface de substrat. Cependant ce type de LEDs n'a pas que des avantages. En

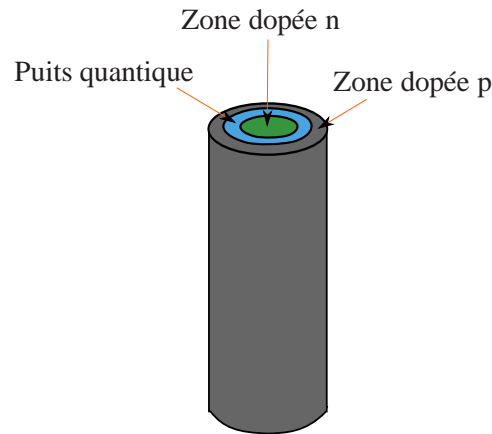


FIGURE 2.18 – LED à nanofil radiale. Le puits quantique enveloppe le cœur sur toute la hauteur du fil. La partie de type p recouvre ensuite le puits, c'est la coquille.

effet la densité de courant par fil sera bien plus importante et de ce fait la quantité de chaleur par fil également ce qui peut être néfaste pour la jonction.

De plus le rapport entre la surface du puits et le volume du nanofil étant grand, le rayon du nanofil devra être très faible pour ne pas créer de dislocations. Selon Raychaudhuri (Raychaudhuri and Yu, 2006), il existe un rayon critique en dessous duquel l'énergie stockée dans le cœur ne permet pas de former de défauts. Comme figuré sur la figure 2.19, le rayon critique dépend de la composition d'indium.

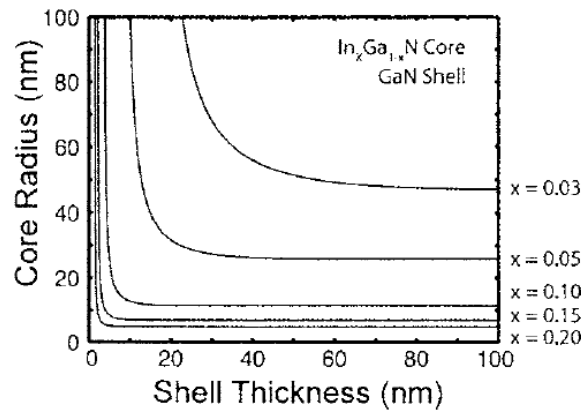


FIGURE 2.19 – Dimensions critiques d'une hétérostructure radiale d'*InGaN* (Raychaudhuri and Yu, 2006). Une proportion d'indium importante contraint le rayon critique à une petite valeur.

Les zones dopées p et n devront être isolées à la base afin de ne pas court-circuiter l'hétérojonction (Lee et al., 2009b). L'injection de porteurs la plus efficace correspond à un chemin parcouru par les porteurs le plus court possible et donc à un contact métallique pour la zone p sur toute la hauteur du nanofil, comme représenté sur la figure 2.20.

Lieber utilise la méthode de MOCVD pour élaborer des nanofils suivant l'axe *a* (Qian et al., 2005) comme illustré sur la figure 2.21. Par conséquent celui-ci sera de forme triangulaire et les puits quantiques auront la même orientation que pour les hétérostructures axiales : le plan du puits étant perpendiculaire à l'axe *c*, les puits seront polaires.

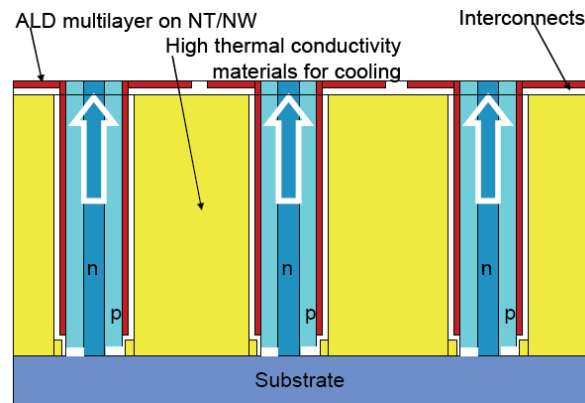


FIGURE 2.20 – Prise de contact d’une LED radiale, ALD signifie atomic layer deposition (Lee et al., 2009b). La prise de contact de la zone de type n s’effectue par le substrat tandis que celle de la zone de type p a lieu sur quasiment toute la hauteur du fil. Il est important d’isoler le substrat du contact p afin de ne pas réaliser de court circuit.

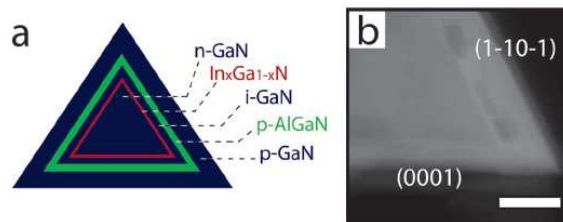


FIGURE 2.21 – Schéma et image MEB d’une LED radiale, échelle 100nm (Qian et al., 2005).

Lee réalise une hétérostructure core-shell de $GaN/InGaN/GaN/ZnO$ croissant suivant l’axe c par MOCVD (Lee et al., 2009a). Le nanofil est alors hexagonal (fig. 2.22) et les puits qui sont perpendiculaires à l’axe a, ont une orientation non polaire. Les nanofils ont un diamètre typique de $1\mu m$ et une longueur de $6\mu m$.

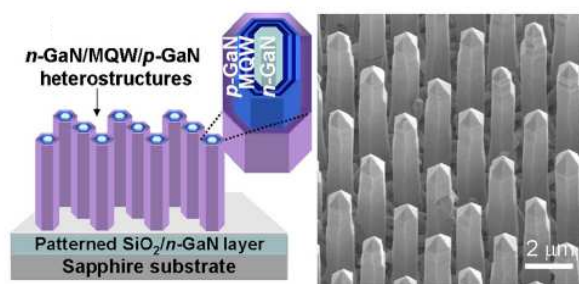


FIGURE 2.22 – Schéma et image MEB d’un réseau de LEDs à nanofils (Lee et al., 2009a)

Tout comme pour les LEDs à nanofil axiales, il n’y a pas d’exemples de LEDs radiales ”tout ZnO ” dans la littérature. Des études sur les hétérostructures radiales ont cependant été effectuées (Jang et al., 2006; Willander et al., 2009).

2.3.3 Fils observés pendant la thèse

Au cours de ma thèse, j’ai été amenée à étudier des nanofils obtenus par croissance MOCVD et par croissance MBE.

2.3.3.1 MOCVD

Les fils sont alors soit en ZnO soit en GaN .

Les fils de GaN sont de forme triangulaire ou bien de forme hexagonale (fig. 2.23(a)). Ces structures ont une longueur importante comprise entre $4\mu m$ et $30\mu m$ et des diamètres typiques de l'ordre de $400nm$ à $5\mu m$. Le substrat est du saphir.

La MOCVD étant une technique de croissance chimique intervenant au niveau des surfaces, les puits quantiques devraient être naturellement en cœur-coquille sur toute la longueur du fil. Cependant lors de la croissance de puits d' $InGaN$, il y a un dépôt uniquement à l'extrémité supérieure, à la fois sur le bord du fil et sur le sommet du fil (fig. 2.23(b)) créant ainsi deux types de puits : un puits axial et un puits radial sur une courte épaisseur, qui émettent chacun à deux longueurs d'onde différentes puisque leur épaisseur et leur contrainte respectives ne sont pas du tout similaires. Suivant les conditions de croissance, des défauts peuvent être présents.

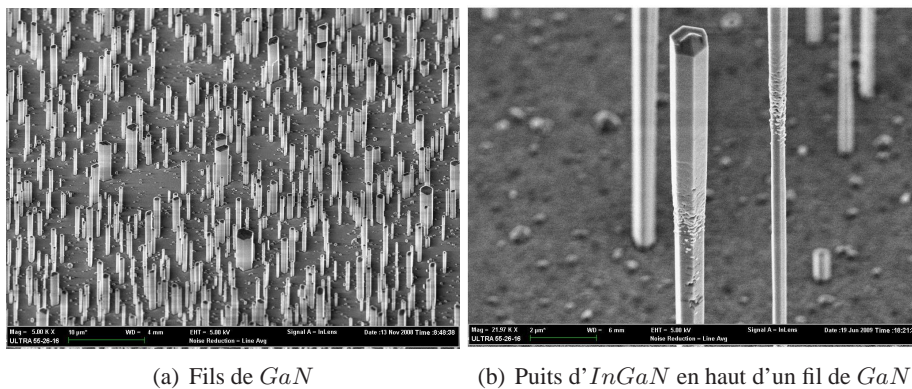


FIGURE 2.23 – Photos MEB de nanofils de GaN fabriqués par Robert Koster dans le cadre de sa thèse à l'INAC

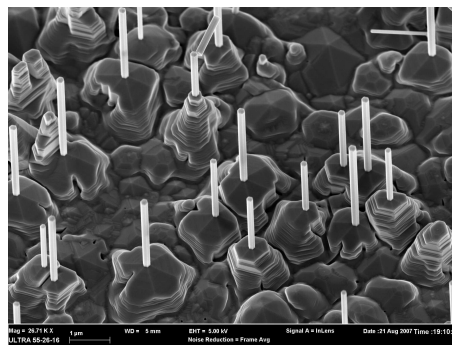


FIGURE 2.24 – Photo MEB de nanofils de ZnO fabriqués par Robin Thierry dans le cadre du projet Carnot Éclairage

Les fils de ZnO ont toujours une base pyramidale de ZnO . La forme des fils est hexagonale et l'homogénéité des fils sur un même échantillon est beaucoup plus importante que dans le cas des fils GaN (fils de même diamètre, forme de la facette semblable d'un fil à l'autre,...). Par ailleurs l'émission en photoluminescence de ces fils ne contient pas de bande de défauts contrairement aux fils de GaN qui émettent dans le jaune en plus de l'émission bande à bande.

La densité des fils est typiquement de l'ordre de 1 à 10 fils par μm^2 . Les fils que j'ai pu observer étaient tous sur un substrat de saphir. Les longueurs typiques réalisables sont comprises entre 2 et $10\mu m$ avec des diamètres entre $50nm$ et $500nm$ comme illustré sur la figure 2.24.

2.3.3.2 MBE

Les LEDs à nanofils de GaN fabriqué en MBE par Gabriel Tourbot dans le cadre du projet Carnot Éclairage ont une forme similaire aux nanofils de Kishino avec un élargissement de la zone dopée p encore plus prononcé (Bavencove et al., 2010). Au cours de ma dernière année de thèse, cet élargissement relatif a pu être fortement réduit en augmentant la largeur de la base et en diminuant l'ouverture angulaire de la zone de type p comme on peut le constater sur la figure 2.25.

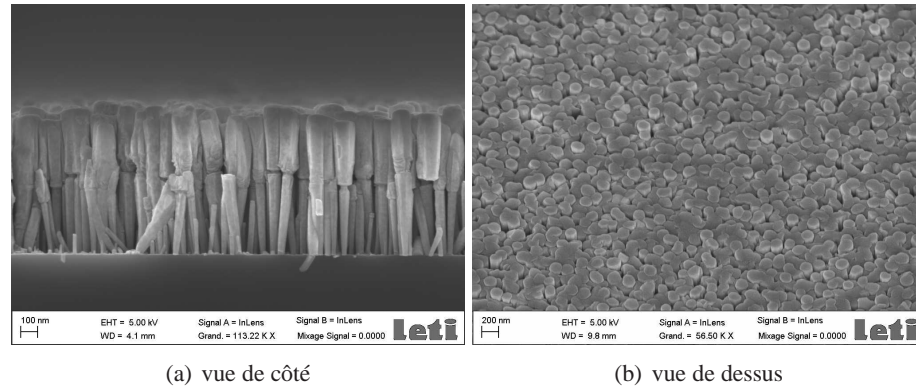


FIGURE 2.25 – Photos MEB de nanofils de GaN fabriqués par Gabriel Tourbot dans le cadre de sa thèse (collaboration LETI-INAC).

Les LEDs ont les caractéristiques suivantes :

- ▷ hauteur de la zone dopée n $600nm$,
- ▷ hauteur de la zone de puits et de la zone non dopée $35nm$,
- ▷ hauteur de la zone dopée p $400 - 500nm$,
- ▷ diamètre des nanofils à la base $30 - 50nm$,
- ▷ diamètre des nanofils au sommet $200 - 400nm$,
- ▷ substrat de silicium.

2.4 Conclusion

Le remplacement des ampoules à incandescence par des LEDs dans le domaine de l'éclairage permettrait de réaliser des économies d'énergies importantes. Pour que la place de ces dispositifs soit majoritaire, les caractéristiques des LEDs doivent encore être améliorées et leur prix diminué. Le rendement d'extraction avec le rendement quantique interne sont quasiment les deux derniers points d'amélioration. La problématique de l'extraction de lumière est donc très importante dans le domaine de l'éclairage à LED. Dans ce sens, les LEDs blanches actuelles sont structurées après croissance afin d'augmenter l'extraction, de 5% après croissance jusqu'à 80%. Mais cette amélioration nécessite une succession d'étapes technologiques qui augmente le prix de fabrication de la LED.

Les LEDs à nanofils permettent une nanostructuration de la couche active naturelle dès la croissance. Un autre intérêt majeur de ce type de LED est la bonne qualité cristalline du matériau qu'il semble possible de conserver quelque soit le substrat utilisé.

Ces nouvelles LEDs sont donc un concept fort qui apporte de nombreux avantages potentiels et révolutionne les règles de conception des LEDs. Nous avons présenté dans ce chapitre les deux types de LEDs à nanofils existants : la LED axiale et la LED radiale.

Cependant l'introduction des LEDs à nanofils sur le marché de l'éclairage présente quelques difficultés puisque tout le développement de ce nouveau concept est à réaliser. Ce travail à long terme comprend l'optimisation de la LED, la conception, la maîtrise de la croissance au niveau industriel, le développement du packaging et des étapes de fabrications.

Les LEDs planaires actuelles étant déjà très performantes, les LEDs à nanofil combleront certainement dans un premier temps, les niches dans des domaines où les LEDs planaires ne sont pas envisageables ou ont un très mauvais rendement. L'émission dans le vert avec le GaN ou dans l'UV avec le ZnO seraient ainsi deux premières voies de développement.

LE NANOFIL UNIQUE

Résumé.

Les nanofils sont considérés dans ce chapitre comme étant suffisamment séparés pour être considérés comme isolés. L'émission de lumière par le puits quantique est modifiée par rapport à celle dans une structure homogène massive. Elle est en réalité contrôlée par les deux types de modes présents dans le nanofil qui sont en compétition. Les modes de galerie vont par des résonances au niveau de la source renforcer l'émission. Les modes guidés au contraire conduisent la lumière vers les extrémités du fil, ce qui est favorable à l'extraction lumineuse. La meilleure géométrie sera un compromis entre l'extraction et la quantité de lumière émise. Des vérifications expérimentales sur des nanofils *GaN* MOCVD ont permis de confronter certains résultats théoriques à des valeurs expérimentales.

3.1 Introduction

La problématique de ce travail est de comprendre comment la lumière est émise dans le nanofil ainsi qu'à l'extérieur du nanofil pour ensuite choisir la géométrie de fil permettant d'extraire le plus de lumière.

Les objets étudiés dans le cadre de ce chapitre sont des fils de ZnO et de GaN ayant un rayon compris entre $30nm$ et $150nm$ dans la majorité des cas. Ils correspondent aux dimensions typiques des LEDs à nanofils fabriquées par Hersee (Hersee et al., 2006). Ce choix de rayons permet aux nanofils d'avoir des propriétés intrinsèques intéressantes du point de vue de la qualité du matériau ainsi que d'autres propriétés physiques attractives pour l'extraction tout en conservant une géométrie simple : un seul nanofil. En effet, les fils seront supposés suffisamment séparés les uns des autres de manière à se comporter comme s'ils étaient isolés.

Les phénomènes physiques clés présents dans le cadre de l'étude d'un nanofil isolé, peuvent être assez facilement observés de manière expérimentale et numérique.

Lorsqu'un nanofil est excité par un faisceau laser de longueur d'onde plus courte que celle du gap du nanofil, celui-ci émet de la lumière par photoluminescence. Si le nanofil est couché sur un substrat, on peut alors observer au microscope une image semblable à celle présentée sur la figure 3.1. Le point de focalisation du laser se situe au milieu du fil, il n'est pas visible sur la figure. On constate qu'une partie de la lumière est émise au point de pompage laser, tandis qu'une autre partie de la lumière est émise aux extrémités du nanofil.



FIGURE 3.1 – Observation en microscope confocal de la photoluminescence d'un nanofil unique de GaN MOCVD couché sur une grille pour TEM et pompé par un faisceau laser ($\lambda = 407nm$).

Une expérience numérique peut également mettre en évidence ce phénomène. Un dipôle électrique est placé au centre d'un nanofil et les champs électromagnétiques résultant de l'émission dipolaire sont ensuite calculés à la fois dans le fil et autour de celui-ci. Le résultat est présenté sur la figure 3.2. Le calcul a été réalisé par FDTD (cf annexe A.1). A nouveau, une partie de lumière émise par le dipôle sort directement du nanofil depuis la zone d'émission, tandis qu'une autre partie se propage le long du nanofil pour ensuite être extraite aux extrémités.

Le nanofil se comporte comme un guide d'onde, ce qui explique qu'une partie de la lumière émise soit visible en bout de fil. Les propriétés de cette lumière guidée ont été étudiées dans la littérature, principalement par Maslov (Maslov and Ning, 2003, 2004; Maslov et al., 2006). Cependant pour une utilisation des nanofils en tant que LED, les capacités d'extraction n'ont pas été évaluées. Dans la première partie de ce chapitre, je reprendrai, comparerai et compléterai les différents résultats de la littérature sur ce point.

Les propriétés de la lumière émise directement depuis la zone émettrice à l'intérieur du nanofil ont également été étudiées théoriquement. Cette lumière est en réalité émise dans des modes particuliers, les modes de galerie. Ils correspondent aux modes rayonnés directement depuis le lieu d'émission. Ce phénomène a été étudié précédemment dans la littérature pour des applications lasers, avec des rayons de nanofils très grands devant la longueur d'onde. Les propriétés de ces modes intéressantes pour l'extraction d'un nanofil isolé seront donc présentées plus en détail dans une deuxième partie.

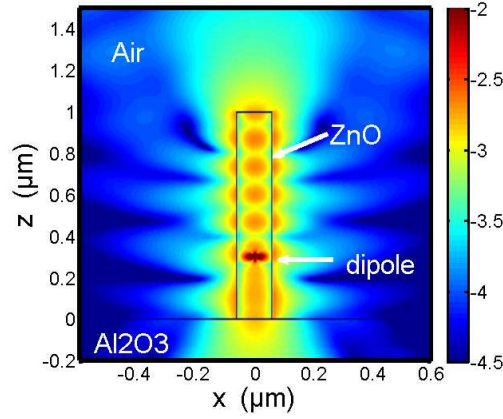


FIGURE 3.2 – Simulation de l’émission d’un dipôle à $\lambda = 380nm$ dans un nanofil de $100nm$ de rayon et entouré d’air sur un substrat de saphir. L’intensité du champ électrique est représentée. Une partie de la lumière émise sort directement du fil tandis qu’une autre est guidée jusqu’aux extrémités du nanofil. La réflexion vers l’air est plus importante que celle sur le saphir.

Les dimensions de nanofils étudiés étant très inférieures par rapport à la longueur d’onde d’émission du ZnO ($\lambda = 380nm$, (Hersee et al., 2006)), l’émission de la source de lumière sera modifiée par rapport à une structure de LED planaire classique. Il convient donc dans une troisième partie à partir de la connaissance des modes, de comprendre l’évolution du taux d’émission spontanée.

Enfin à partir des résultats précédents, l’extraction de lumière des LEDs à nanofils uniques pourra être évaluée dans une quatrième partie.

A partir des échantillons et du matériel d’optique disponibles au cours de la thèse, différentes vérifications expérimentales ont été réalisées et sont présentées dans une cinquième partie. Ces manipulations ont pour but de confronter certains résultats numériques avec des valeurs calculées.

Ce chapitre repose sur l’hypothèse que les nanofils sont suffisamment séparés pour être considérés comme isolés. Dans une dernière partie, nous verrons l’impact de la présence d’autres fils dans le voisinage avant de conclure. Les nanofils étudiés auront une section circulaire afin de simplifier certaines études. Les nanofils à section hexagonale ont également été étudiés, le résultat de cette étude est présenté en annexe A.2.

3.2 La lumière guidée

Dans cette partie, nous présenterons certaines caractéristiques des modes guidés afin de comprendre le rôle de ces modes sur l’émission de lumière par un fil isolé. Une partie des résultats sera de plus utilisée pour calculer le rendement d’extraction de ces fils.

3.2.1 Modes guidés d’une fibre à saut d’indice

3.2.1.1 Résolution des équations de Maxwell

Le nanofil de part sa structure cylindrique se comporte du point de vue électromagnétique, comme une fibre optique à saut d’indice, l’indice de cœur étant celui du matériau grand gap et l’indice de gaine celui du matériau enrobant. Pour que la lumière puisse être guidée le long du fil, il est évident que l’indice de celui-ci doit être supérieur à l’indice de la gaine, ce qui sera généralement le cas avec les nitrures puisque l’indice du GaN vaut 2.45 approximativement.

Snyder dans (Snyder and Love, 2000a) introduit V , le paramètre guide d'onde également appelé fréquence normalisée ou fréquence réduite :

$$V = k_0 R \sqrt{n_{co}^2 - n_{cl}^2} \quad (3.1)$$

avec k_0 le vecteur d'onde dans le vide, R le rayon de la fibre optique, n_{co} l'indice du coeur et n_{cl} l'indice de la gaine.

Pour pouvoir décrire le comportement de la fibre en utilisant les lois de réflexion et de réfraction de Fresnel, il faut, selon l'auteur, que $V \gg 1$. Appliquons l'équation 3.1 dans le cas d'un nanofil typique de ZnO ou de GaN avec les paramètres donnés dans le tableau 3.1. La longueur d'onde à $450nm$ dans le cas du GaN correspond à l'émission typique de puits quantiques d' $InGaN$. L'indice du GaN provient de (Yu et al., 1997b) et celui du ZnO de (Yoshikawa and Adachi, 1997). Dans toute la suite de ce chapitre l'indice du nanofil sera égal à 2.45 sauf exception. Les résultats seront généralement présentés pour une longueur d'onde de $380nm$ correspondant ainsi à l'émission du ZnO . L'indice du GaN à $450nm$ étant identique à celui du ZnO à $380nm$, il est aisé de transcrire les résultats à $450nm$, en multipliant la valeur du rayon du nanofil par le rapport $450/380$.

	ZnO	GaN
longueur d'onde λ	380nm	450nm
rayon R	60nm	60nm
indice du fil n_{co}	2.45	2.45
indice du milieu enrobant n_{cl}	1	1
V	2.2	1.9

TABLE 3.1 – Paramètres typiques d'un fil permettant de calculer la fréquence réduite d'un guide d'onde à base de nanofil. La longueur d'onde d'émission dans le cas du GaN correspond à l'émission d'un puits d' $InGaN$.

V ne respecte pas du tout la condition énoncée précédemment, par conséquent il faut prendre en compte la diffraction : le régime de fonctionnement est alors dit de fort confinement. Il est nécessaire d'effectuer une analyse électromagnétique du système en résolvant les équations de Maxwell.

Durant cette thèse, j'ai choisi une approche de ce problème sous la forme modale ou autrement dit en résolvant une équation d'état. Une autre approche aurait été la méthode de la fonction de Green. Cette dernière est plus utilisée pour déterminer les pertes des guides d'ondes.

Pour pouvoir déterminer les modes propres d'une fibre à saut d'indice, il faut écrire les équations de Maxwell dans chacun des milieux (gaine et coeur). Il faut ensuite chercher parmi les solutions, celles qui satisfont les conditions aux limites à l'interface entre chacun des milieux et qui propagent l'énergie selon $+z$.

Les modes d'un guide d'onde constituent une famille de solutions et les champs modaux associés s'écrivent sous la forme (Snyder and Love, 2000b) :

$$\overrightarrow{E}(r, \varphi, z) = \overrightarrow{E^0}(r, \varphi) e^{j(\omega t - \beta z)} \quad (3.2)$$

$$\overrightarrow{H}(r, \varphi, z) = \overrightarrow{H^0}(r, \varphi) e^{j(\omega t - \beta z)} \quad (3.3)$$

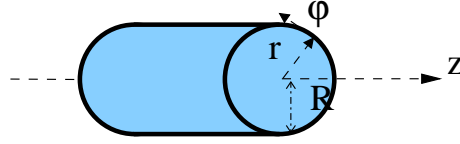
avec ω la pulsation et β la constante de propagation.

Soient $(\overrightarrow{u_r}, \overrightarrow{u_\varphi}, \overrightarrow{u_z})$ les vecteurs de la base cylindrique où z est l'axe de la fibre et les coordonnées r et φ sont dans le plan de section droite de la fibre (fig 3.3).

Les champs électrique et magnétique s'écrivent alors :

$$\overrightarrow{E} = Re[E_r^0 \overrightarrow{u_r} + E_\varphi^0 \overrightarrow{u_\varphi} + E_z^0 \overrightarrow{u_z}] e^{j(\omega t - \beta z)} \quad (3.4)$$

$$\overrightarrow{H} = Re[H_r^0 \overrightarrow{u_r} + H_\varphi^0 \overrightarrow{u_\varphi} + H_z^0 \overrightarrow{u_z}] e^{j(\omega t - \beta z)} \quad (3.5)$$

FIGURE 3.3 – Base cylindrique (e_r, e_φ, e_z) dans un nanofil de rayon R .

Les équations de Maxwell permettent de lier les termes en r et φ des champs électromagnétiques aux composantes en z :

$$E_r^0 = -\frac{j}{\gamma^2} [\beta \frac{\partial E_z^0}{\partial r} + k_0 \eta_0 \frac{1}{r} \frac{\partial H_z^0}{\partial \varphi}] \quad (3.6)$$

$$E_\varphi^0 = -\frac{j}{\gamma^2} [\beta \frac{1}{r} \frac{\partial E_z^0}{\partial \varphi} - k_0 \eta_0 \frac{1}{r} \frac{\partial H_z^0}{\partial r}] \quad (3.7)$$

$$\eta_0 H_r^0 = -\frac{j}{\gamma^2} [\beta \eta_0 \frac{\partial H_z^0}{\partial r} - n^2 k_0 \frac{1}{r} \frac{\partial E_z^0}{\partial \varphi}] \quad (3.8)$$

$$\eta_0 H_\varphi^0 = -\frac{j}{\gamma^2} [\beta \eta_0 \frac{1}{r} \frac{\partial H_z^0}{\partial \varphi} + n^2 k_0 \frac{\partial E_z^0}{\partial r}] \quad (3.9)$$

avec $\gamma^2 = n^2 k_0 - \beta^2$, $\eta_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}$ et n l'indice de réfraction du milieu ($n = n_{co}$ dans le fil et $n = n_{cl}$ dans la gaine).

Par ailleurs on obtient à partir de l'équation d'onde ($\vec{\Delta} \vec{\psi} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{\psi}}{\partial t^2}$) également appelée équation d'Helmholtz, les équations d'onde modifiées qui ne font intervenir que les composantes axiales :

$$\frac{\partial^2 E_z^0}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E_z^0}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 E_z^0}{\partial \varphi^2} + \gamma^2 E_z^0 = 0 \quad (3.10)$$

$$\frac{\partial^2 H_z^0}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial H_z^0}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 H_z^0}{\partial \varphi^2} + \gamma^2 H_z^0 = 0 \quad (3.11)$$

En raison de la symétrie cylindrique du guide d'onde, les solutions recherchées auront une symétrie de révolution et pour résoudre les équations 3.10 et 3.11, les champs seront exprimés en exploitant la séparation des variables : $M(r)Q(\varphi)$.

On montre que les solutions à symétrie de révolution auront $Q(\varphi) = A \cos(m\varphi + \varphi_0)$ avec m l'indice azimutal qui est un nombre entier sans dimension. φ_0 permet de distinguer deux familles de solutions et vaut soit 0 soit $\pi/2$.

Par ailleurs $M(r)$ doit vérifier l'équation radiale :

$$\frac{d^2 M}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dM}{dr} + (\gamma^2 - \frac{m^2}{r^2}) M = 0 \quad (3.12)$$

Cette équation est connue sous le nom d'équation de Bessel. Il existe plusieurs solutions de cette équation ayant des comportements asymptotiques différents. La réalité physique de la solution impose de faire des choix parmi ces fonctions. Dans le cœur, la solution sera du type onde stationnaire et de valeur finie à l'origine : c'est la fonction de Bessel de première espèce J_m , tandis que dans la gaine la solution devra être évanescente lorsque $r \rightarrow \infty$: c'est la fonction de Hankel modifiée d'ordre deux K_m . Les composantes de champ axiales s'écrivent alors :

$$\text{Dans le fil : } E_z^0 = A J_m(ur) \cos(m\varphi + \varphi_0) \quad (3.13)$$

$$H_z^0 = B J_m(ur) \sin(m\varphi + \varphi_0) \quad (3.14)$$

$$\text{Dans la gaine : } E_z^0 = C K_m(wr) \cos(m\varphi + \varphi_0) \quad (3.15)$$

$$H_z^0 = D K_m(wr) \sin(m\varphi + \varphi_0) \quad (3.16)$$

avec $u^2 = n_{co}^2 k_0^2 - \beta^2$ et $w^2 = \beta^2 - n_{cl}^2 k_0^2$ qui sont réels.

En appliquant les conditions aux limites à l'interface entre le fil et la gaine pour les composantes de champ tangentielle, on obtient les quatre équations :

$$A\left(\frac{m\beta}{u^2 R^2} J_m(uR)\right) + B\left(\frac{k_0 \eta_0}{uR} J'_m(uR)\right) + C\left(\frac{m\beta}{w^2 R^2} K_m(wR)\right) + D\left(\frac{k_0 \eta_0}{wR} K'_m(wR)\right) = 0 \quad (3.17)$$

$$A\left(\frac{k_0 n_{co}^2}{uR} J'_m(uR)\right) + B\left(\frac{\eta_0 m \beta}{u^2 R^2} J_m(uR)\right) + C\left(\frac{k_0 n_{cl}^2}{wR} K'_m(wR)\right) + D\left(\frac{\eta_0 m \beta}{w^2 R^2} K_m(wR)\right) = 0 \quad (3.18)$$

$$A(J_m(uR)) + B(0) - C(K_m(wR)) + D(0) = 0 \quad (3.19)$$

$$A(0) + B(J_m(uR)) - C(0) + D(K_m(wR)) = 0 \quad (3.20)$$

Des solutions β non triviales existent si et seulement si le déterminant du système est nul (fig. 3.4). Le noyau de cette matrice donne les valeurs de A , B , C et D correspondant aux amplitudes des champs électromagnétiques.

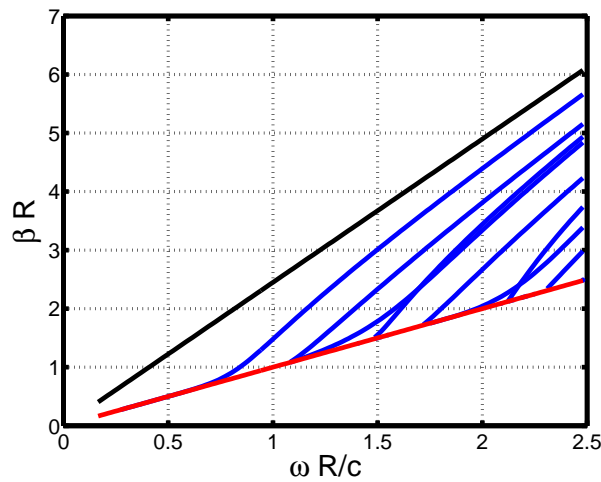


FIGURE 3.4 – Courbes de dispersion des différents modes (en bleu) d'un nanofil de rayon R entouré d'air ($n_{cl} = 1$) à la fréquence ω . La ligne asymptotique $\beta = n_{cl} \omega / c$ (resp. $\beta = n_{co} \omega / c$) est représentée en rouge (resp. en noir). La constante de propagation β des modes guidés est comprise entre les deux lignes asymptotiques.

Lorsque la constante de propagation d'un mode tend vers sa valeur minimale $n_{cl} k_0$ d'après la figure 3.4, alors w tend vers 0 et u vers V/R , ce qui signifie que le mode n'est plus confiné dans le fil et que l'amplitude des champs ne décroît plus lorsque r tend vers l'infini.

La valeur asymptotique supérieure de la constante de propagation correspond à $n_{co} k_0$.

Les courbes de dispersion des modes guidés ont été observées expérimentalement sur des nanofils de $ZnSe$ (van Vugt et al., 2009) lors d'expériences de photoluminescence. Ces ondes étant par définition guidées, leurs propriétés sont observables en champ lointain, aux extrémités du nanofil qui, comme il a été précisé dans l'introduction du chapitre, sont un lieu d'extraction de la lumière guidée. On pourrait également imaginer d'étudier les courbes de dispersion dans des expériences en champ proche.

Soit $V_0 = \beta_0 R$ la fréquence de coupure normalisée d'un mode, c'est à dire la valeur minimale de βR tel qu'il existe un β solution du système d'équations de 3.17 à 3.20.

La sous famille dont la fréquence de coupure coïncide à un zéro de la fonction de Bessel : $J_m(V_0) = 0$, correspond aux modes $EH_{m,p}$ avec m l'indice azimutal et p l'indice radial. p est le rang de la solution d'indice azimutal m . L'autre famille est nommée $HE_{m,p}$. On montre que tous les modes hormis un, le mode fondamental, ont une fréquence de coupure basse.

Le mode fondamental est le mode HE_{11} . Cela signifie que quelque soit le rayon du fil, il y aura toujours au moins un mode guidé présent. Les valeurs des fréquences de coupure réduites sont présentées dans le tableau 3.2 pour une gaine d'air et une gaine de silice. La limite monomode d'un fil entouré d'air est donc $R = 65nm$

pour le ZnO ($\lambda = 380nm$) et $R = 77nm$ pour le GaN ($\lambda_{InGaN} = 450nm$).

	gaine d'air	gaine de silice
TE_{01} et TM_{01}	1.08	1.25
HE_{21}	1.44	1.47
EH_{11} et HE_{12}	1.71	1.98
HE_{31}	2.12	2.25
EH_{21}	2.30	2.65

TABLE 3.2 – Fréquence de coupure réduite V_0 des modes guidés d'un nanofil unique.

Si $m \neq 0$, les termes A , B , C et D sont non nuls et par conséquent les champs E et H ont toutes leurs composantes non nulles également, ces modes sont alors qualifiés de modes hybrides. Par ailleurs, comme φ_0 peut prendre deux valeurs (0 et $\pi/2$), alors pour un même β solution, il existe deux modes guidés identiques à une rotation de $\pi/2$ près : les modes hybrides sont dégénérés.

La prise de contact métallique est nécessaire au fonctionnement de la LED à nanofil. L'introduction du métal autour du nanofil va modifier les propriétés des modes guidés dont les valeurs de β . Les modifications seront plus ou moins importantes suivant le type de métal utilisé et l'épaisseur du contact comme il est présenté dans l'annexe A.3.

3.2.1.2 Cas particuliers $m = 0$: les modes transverses

Lorsque $m = 0$, les équations 3.17 à 3.20 peuvent être décomposées en deux groupes indépendants avec B et D non nuls d'une part, et A et C non nuls d'autre part. On peut alors distinguer deux sous-familles.

La première avec $A = C = 0$ qui implique que $E_z = 0$, correspond à un mode transverse électrique TE du point de vue du guide d'onde. La seconde avec $B = D = 0$ qui impose que $B_z = 0$, correspond à un mode transverse magnétique TM . Les modes transverses auront donc la décomposition de champs suivante :

$$TM : \begin{pmatrix} E_r \neq 0 \\ H_\varphi \neq 0 \\ E_z \neq 0 \end{pmatrix} \quad (3.21)$$

$$TE : \begin{pmatrix} H_r \neq 0 \\ E_\varphi \neq 0 \\ H_z \neq 0 \end{pmatrix} \quad (3.22)$$

$$(3.23)$$

Comme $m = 0$, les composantes de champs n'ont pas de dépendance en φ car $\sin(m\varphi + \varphi_0) = \sin(\varphi_0)$ et $\cos(m\varphi + \varphi_0) = \cos(\varphi_0)$, ces modes ont donc une symétrie de révolution circulaire comme on peut le constater sur la figure 3.5. Par ailleurs les modes transverses ne sont pas hybrides car pour avoir des composantes de champ non nulles, il est nécessaire pour TE que $\varphi_0 = \pi/2$, et pour TM que $\varphi_0 = 0$.

3.2.2 Propriétés intéressantes pour les LEDs à nanofil

3.2.2.1 Indice effectif

Comme il a été vu précédemment, chaque mode est caractérisé entre autre par sa constante de propagation β qui est comprise entre $k_0 n_{cl}$ et $k_0 n_{co}$. Il est également intéressant de définir la grandeur β/k_0 qui est appelée indice effectif du mode et est sans dimension.

Un mode dont l'indice effectif est proche de l'indice n_{co} , aura une distribution de champ principalement à l'intérieur du nanofil, alors que si l'indice effectif est proche de n_{cl} , le mode sera déconfiné à l'extérieur du fil.

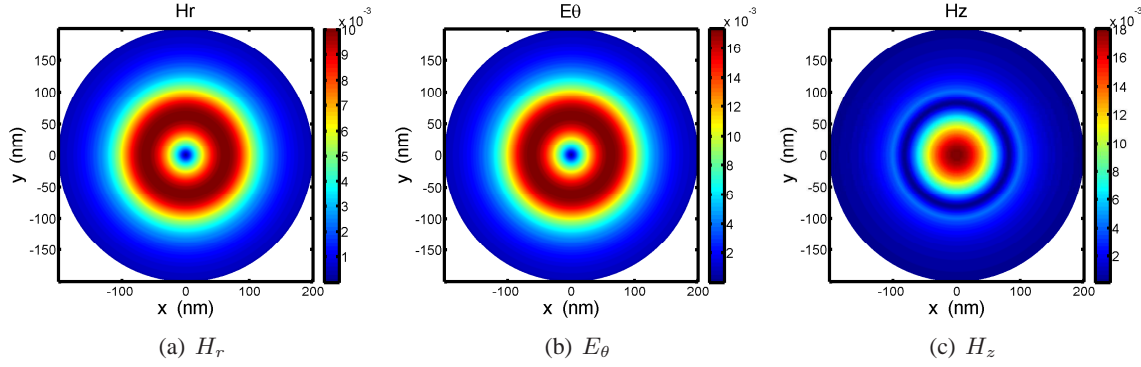


FIGURE 3.5 – Amplitude des composantes de champ non nulles du mode TE_{01} d'un fil de rayon $R = 100nm$ à la longueur d'onde $\lambda = 380nm$ dans une gaine d'air. Les champs d'un mode transverse ont une symétrie cylindrique.

Tous les modes hormis le mode fondamental ayant une fréquence de coupure, ils ont donc également à fréquence fixe un rayon de coupure comme on peut le constater sur la figure 3.6. Par ailleurs l'indice effectif d'un mode est toujours minimum après le rayon de coupure de celui-ci, ce qui est bien cohérent avec le fait qu'ils soient déconfinés à l'extérieur du nanofil.

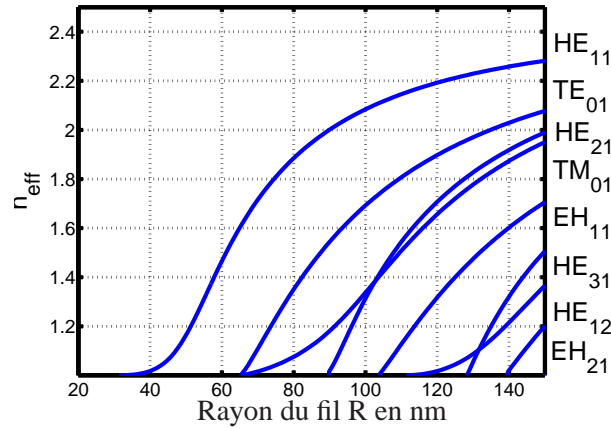


FIGURE 3.6 – Indice effectif des modes d'un nanofil de rayon R à la longueur d'onde de $380nm$. L'indice effectif est proche de 1 au niveau du rayon de coupure et proche de l'indice du fil pour les rayons très grands devant le rayon de coupure. Le mode fondamental n'a pas de rayon de coupure.

3.2.2.2 Carte de champ

La figure 3.7 présente les cartes de champs des quatre premiers modes guidés d'une fibre circulaire d'un nanofil de rayon $R = 100nm$ à la longueur d'onde de $380nm$. On retrouve l'invariance circulaire des modes transverses. De plus la complexité des cartes de champ augmente avec l'ordre du mode guidé. Par ailleurs on constate que le mode fondamental est plus confiné que les trois autres, de même pour TE_{01} vis à vis des modes TM_{01} et HE_{21} . Ces deux résultats sont prévisibles d'après la courbe d'indice effectif, figure 3.6 : pour un rayon de $100nm$, l'indice effectif de HE_{11} est supérieur à celui de TE_{01} lui-même supérieur à ceux de TM_{01} et HE_{21} .

Un mode guidé se couplera fortement à une source situé dans le nanofil, lorsque son champ sera concentré à l'intérieur de celui-ci. La proportion de puissance guidée à l'intérieur du nanofil est donc une information importante pour utiliser les modes guidés pour collecter l'émission spontanée du matériau et l'extraire hors de

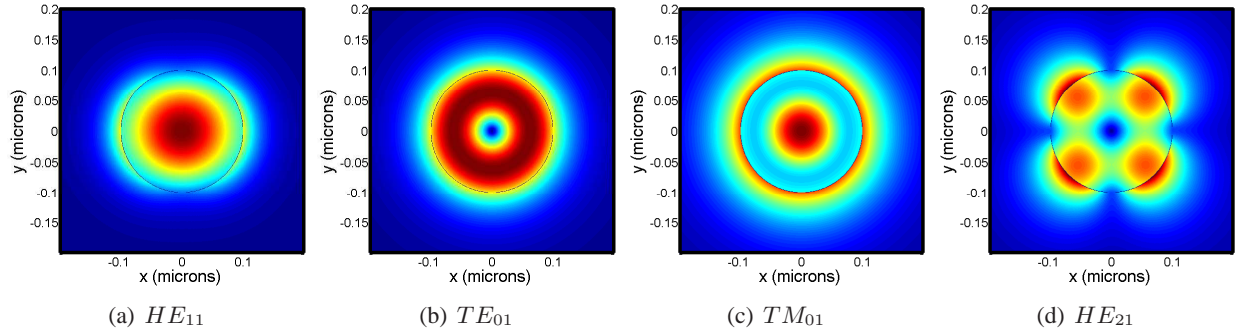


FIGURE 3.7 – Distribution de l'intensité du champ électrique des quatre premiers modes guidés d'un nanofil de rayon $R = 100\text{nm}$ à la longueur d'onde $\lambda = 380\text{nm}$ dans une gaine d'air. La complexité des modes augmente avec l'indice azimutal.

la structure. Soit Γ le rapport entre la puissance à l'intérieur du nanofil et la puissance totale du mode guidé. D'après la courbe 3.8, seulement certains modes ne possèdent pas de puissance dans le cœur à la fréquence de coupure : ce sont les modes TE_{0m} , TM_{0m} , HE_{1m} et HE_{2m} . Loin de la fréquence de coupure, tous les modes ont une puissance concentrée à l'intérieur du nanofil, ce qui est cohérent avec les précédents résultats.

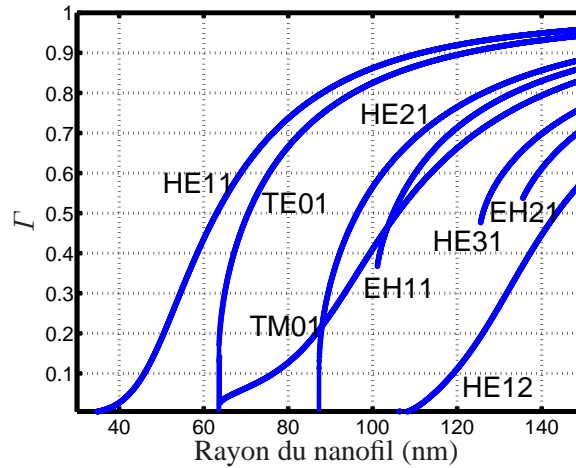


FIGURE 3.8 – Γ des modes d'un nanofil de rayon R à la longueur d'onde de 380 nm. Seuls les modes TE_{0m} , TM_{0m} , HE_{1m} et HE_{2m} ne possèdent pas de puissance dans le nanofil au rayon de coupure.

3.2.3 Extraction des modes guidés

Dans la partie 2.2.2, il a été vu que le rendement d'extraction est un paramètre très important dans le cadre d'une application du type laser ou LED. Il est défini comme étant la fraction de puissance extraite à l'extérieur du nanofil sur la puissance émise par le puits quantique. La réflectivité en bout de fil est donc un paramètre pour juger de la qualité de l'extraction de la lumière guidée : une grande réflectivité signifie peu de lumière transmise ce qui est intéressant au niveau du substrat, en revanche une faible réflectivité est favorable à l'extraction vers le superstrat.

Lorsqu'un mode guidé arrive à une extrémité du nanofil, le faisceau incident est alors décomposé en différents termes (fig. 3.9) :

- ▷ lumière transmise vers le superstrat ou le substrat,
- ▷ lumière réfléchie sur le mode guidé incident,

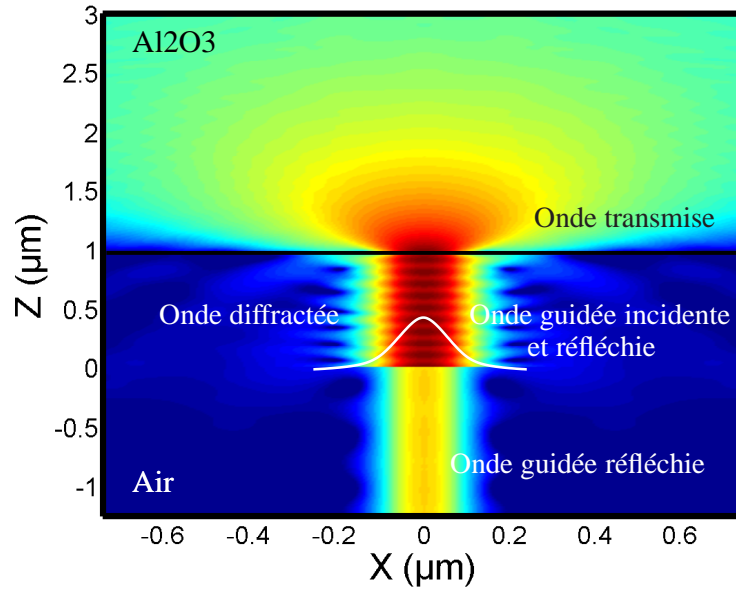


FIGURE 3.9 – Intensité du champ électrique lors de la réflexion du mode guidé HE_{11} sur un superstrat de saphir. Le nanofil a un rayon de $80nm$. La cartographie en coupe est faite à la longueur d'onde de $380nm$. Seule une partie de la lumière réfléchi est guidée le long du fil.

- ▷ lumière réfléchi sur les autres modes guidés,
- ▷ lumière diffractée, c'est la part de lumière réfléchi qui n'est pas guidée le long du fil.

3.2.3.1 Méthode de calcul

Le coefficient de réflectivité modal est défini comme la valeur de la réflexion d'un mode guidé sur tous les modes guidés. Il dépend du mode guidé, du rayon du nanofil, des indices du fil et des milieux environnants : le substrat ou le superstrat d'une part et la gaine d'autre part, et de la longueur d'onde.

La méthode de calcul utilise à la fois des résultats FDTD et ceux décrits dans le paragraphe 3.2.1.1. La FDTD est une méthode de calcul électromagnétique temporel décrite en annexe A.1. Après avoir sélectionné le mode étudié dans le solveur de mode du logiciel FDTD, on injecte cette carte de champ dans une fenêtre de simulation représentant un nanofil avec une interface finie vers le milieu de sortie.

Le coefficient de réflectivité globale est obtenu à partir du flux du vecteur de Poynting à l'interface avec le superstrat¹ suivant la direction z . Dans ce but il faut récupérer à l'issue de la simulation, la carte de champ électromagnétique dans le plan xy . La valeur du flux sera alors égale à $1 - R_{gl}$ avec R_{gl} la réflectivité globale en intensité.

Pour avoir le coefficient de réflectivité modal du mode, un produit scalaire entre le champ réfléchi et le champ de chacun des modes injecté est effectué. Le taux de recouvrement entre ces champs multiplié par le coefficient de réflectivité global correspond au coefficient de réflexion du mode sur les modes guidés.

Par la suite la terminaison du nanofil étudié sera abrupte : la facette de sortie est perpendiculaire à l'axe du fil. Cette hypothèse est justifiée par rapport aux extrémités des fils de ZnO et GaN par MOCVD.

1. En réalité il sera préférable d'utiliser la carte de champ mesurée sur la maille juste en dessous de l'interface.

3.2.3.2 Résultats

La figure 3.10 présente les valeurs de réflexions, transmission et diffraction du mode HE_{11} sur un superstrat d'air. La transmission vers l'air est approximativement supérieure à 80% pour la gamme de rayons de 50 à 150nm. Elle tend de plus vers 1 pour les nanofils de rayon inférieurs à 50nm.

Le coefficient de réflexion d'un mode sur lui-même est inférieur au coefficient de réflexion modal ainsi qu'au coefficient de réflexion totale.

Pour qu'un mode puisse se réfléchir sur un autre mode, il est nécessaire qu'ils aient des propriétés de symétrie identiques. Ainsi, le mode fondamental HE_{11} ne pourra pas se réfléchir sur les modes transverses TE_{01} et TM_{01} et il n'y aura *a priori* pas de couplage modal entre ces modes (sauf si la forme du fil est imparfaite). En revanche HE_{11} a des propriétés de symétrie similaire à celles des modes EH_{11} et HE_{12} , par conséquent dès lors que ces derniers sont présents dans le nanofil, le coefficient de réflectivité sur les modes augmente si l'on prend en compte la réflectivité du mode HE_{11} sur EH_{11} et HE_{12} (fig 3.10). Par ailleurs, on constate sur cette figure que la diffraction diminue lorsque le rayon augmente et que le mode se confine à l'intérieur du nanofil.

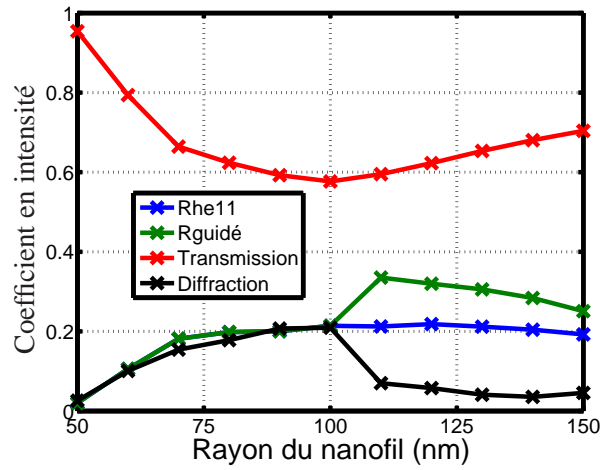


FIGURE 3.10 – Réflexions, transmission et diffraction en intensité du mode HE_{11} à l'extrémité d'un nanofil de rayon R à la longueur d'onde de 380nm dans une gaine d'air vers un superstrat d'air. La réflexion sur les autres modes guidés permet de diminuer la diffraction.

L'évolution de cette réflectivité sur différents substrats et superstrats a été étudiée. Ceux-ci correspondent à des solutions technologiques envisageables. Pour les trois premiers modes guidés, le coefficient de réflectivité d'un mode sur lui-même est représenté sur la figure 3.11. Le résultat est similaire à ceux de la littérature dans le cas de l'air et du saphir (Maslov and Ning, 2003; Wang et al., Feb. 2006).

Dans le cas de l'air, figure 3.11(a), la transmission est importante pour des rayons proches des rayons de coupures pour TE_{01} et TM_{01} et de 0 pour HE_{11} , ce qui est prévisible puisque dans ce cas les modes sont déconfinés dans l'air. Par ailleurs, comme l'avait remarqué Maslov, le mode fondamental a un coefficient de réflectivité vers l'air qui tend vers 0 lorsque le mode est complètement déconfiné dans l'air et vers $(n_{co} - 1)/(n_{co} + 1)$ lorsque le rayon est suffisamment important ($R \gg 120nm$) pour que le mode soit fortement confiné dans le nanofil. Le coefficient de réflectivité semble donc dépendre principalement de la distribution de champ entre le nanofil et sa gaine. Cette propriété sera étudiée dans la paragraphe suivant.

D'après les figures 3.11, plus l'indice du superstrat est proche de celui de l'indice du fil, plus la transmission vers le superstrat est importante : le saphir a ainsi les coefficients de réflectivité les plus faibles après une zone transitoire lorsque le mode est déconfiné hors du fil. L'ITO qui est un superstrat à la fois transparent et conducteur de courant, a un indice de $1.81 + i0.06$ très proche de celui du saphir.

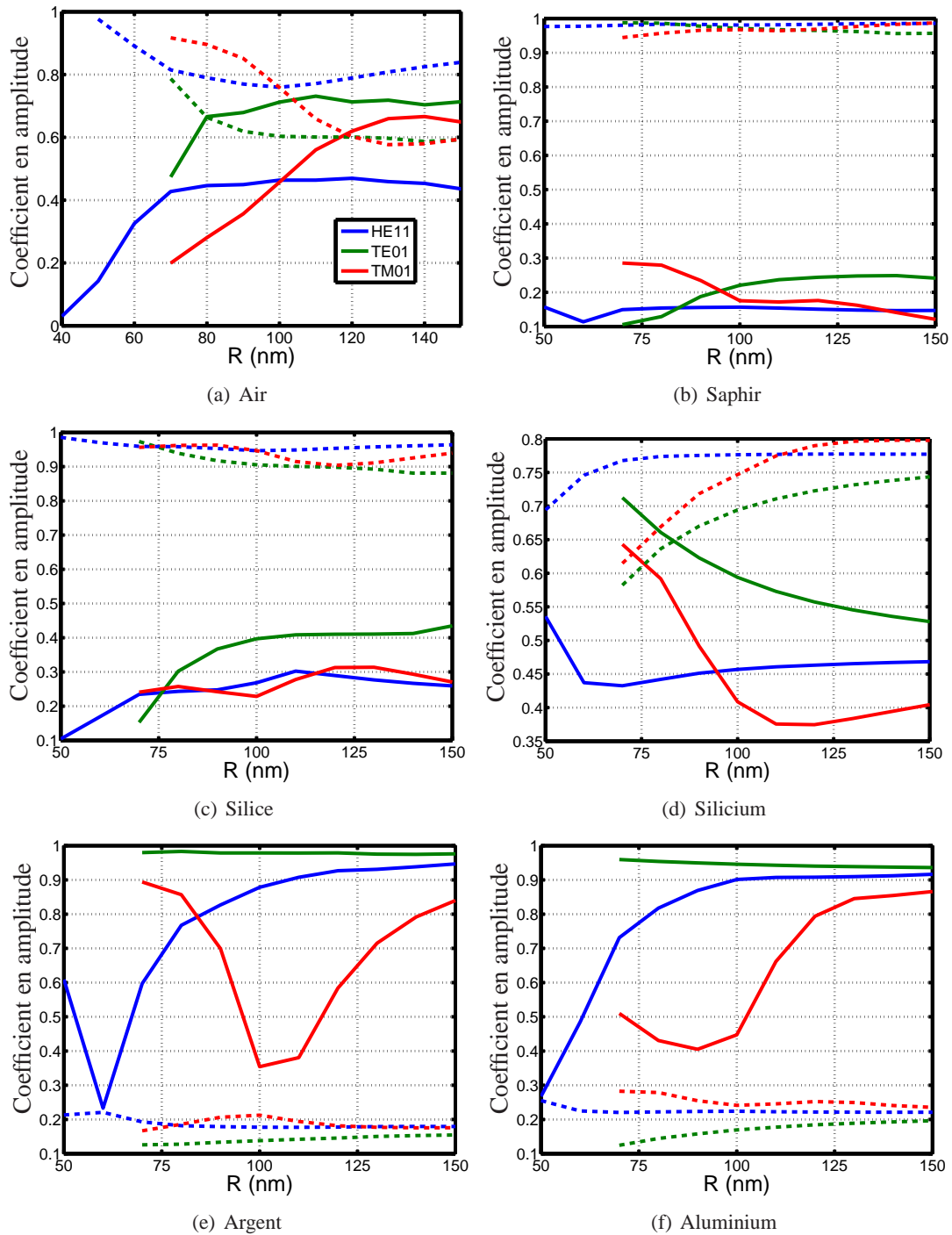


FIGURE 3.11 – Coefficients de réflectivité (traits continus) et de transmission (traits pointillés) en amplitude des modes guidés HE_{11} (bleu), TE_{01} (vert) et TM_{01} (rouge) à la longueur d'onde de 380nm sur différents superstrats et substrats avec une gaine d'air.

Considérons à présent les propriétés de différents substrats.

Le silicium est un substrat peu onéreux mais il a comme inconvénient d'être absorbant dans le visible. Son indice à 380nm est égal à $6.4 + i$: il n'est absolument pas modélisable pas un métal parfait. Par conséquent la transmission vers le silicium sur la figure 3.11(d) est importante ce qui se traduira pas un échauffement de la structure et donc une baisse du rendement de la LED.

Les substrats métalliques en revanche permettent d'obtenir une très faible transmission et une réflectivité importante. Dans certains cas le mode guidé incident peut se coupler à des modes plasmons en surface du métal (annexe A.3). Dans la gamme de longueurs d'onde envisagée, les plasmons sont très absorbants et se transformeront très rapidement en chaleur. Le couplage aux plasmons est compris dans la transmission globale.

La réflectivité modale et la transmission peuvent être en même temps très faibles si la diffusion est importante. C'est le cas par exemple, pour le substrat d'argent avec un fil de 60nm de rayon : $r = 0.23$ et $t = 0.22$ mais la réflectivité totale en amplitude vaut $r_{tot} = 0.87$. L'introduction de fines couches de diélectrique pourra renforcer la réflexion sur le mode guidé par rapport à la diffusion et au couplage avec les modes plasmons (Friedler et al., 2008).

Chaque mode ayant des propriétés différentes, un design fin du milieu de sortie n'est pas réalisable dans la zone multimode, car à chaque mode correspond une certaine structure permettant le renforcement de l'extraction. Une modification de la forme du bout du nanofil, en aiguille ou en cône inversé par exemple, peut également modifier l'extraction des modes guidés. Le cas d'une extrémité en aiguille a été étudié par Gregersen dans (Gregersen et al., 2008) dans le cas des micropiliers de GaAs.

3.2.3.3 Comparaison avec une onde plane

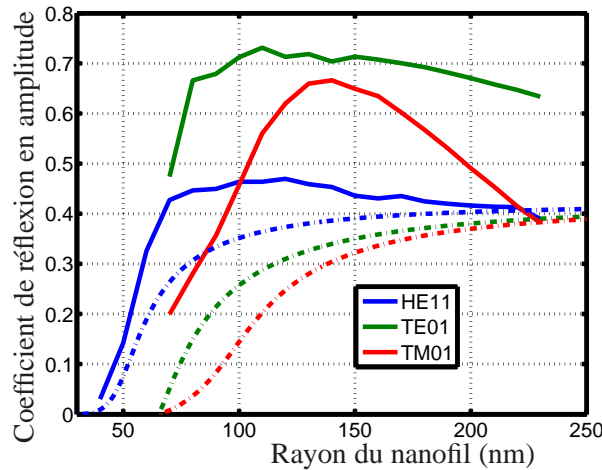


FIGURE 3.12 – Réflexion vers l'air des modes guidés en fonction du rayon. En trait plein, calcul complet à partir d'une simulation FDTD ; en traits discontinus, calcul par le modèle d'onde plane. Dans ce dernier cas la réflectivité correspond à celle d'une onde plane en incidence normale, le milieu incident a un indice égal à l'indice effectif du mode guidé correspondant.

Nous allons maintenant nous intéresser à la comparaison des valeurs de la réflectivité avec celles obtenues à partir d'un modèle de type onde plane.

D'après la partie précédente, le coefficient de réflexion du mode fondamental est semblable à celui d'une onde plane en incidence normale dans la gaine (respectivement dans le nanofil) lorsque le mode est très déconfiné (resp. lorsque le mode est très confiné dans le nanofil).

Par ailleurs l'indice effectif du mode guidé HE_{11} tend vers n_{cl} lorsque $\omega R/c$ est petit (mode déconfiné dans la gaine) et réciproquement l'indice effectif tend vers n_{co} lorsque $\omega R/c$ est grand (mode confiné dans le fil). Il est donc légitime de se demander si le coefficient de réflectivité du mode fondamental est le même que celui d'une onde plane en incidence normale dans un milieu d'indice égal à l'indice effectif du mode. Sur la figure 3.12, la réflectivité vers l'air des trois premiers modes guidés est calculée de deux manières : la première en trait plein représente le résultat obtenu par le calcul complet alors que les pointillés montrent la réflectivité d'une onde plane dans un milieu incident d'indice égal à l'indice effectif du mode guidé correspondant. Ainsi cette approximation n'est absolument pas valide avec les deux modes transverses TE_{01} et TM_{01} . Pour le mode fondamental, l'hypothèse semble juste uniquement dans les cas extrêmes : $R \ll \lambda/2\pi$ et $R \gg \lambda/2\pi$.

Pour comprendre la validité de cette approximation, il faut tout d'abord s'intéresser aux composantes de champ des modes guidés.

Concernant le mode fondamental, la composante de champ suivant z est négligeable devant les autres composantes lorsque $\omega R/c \ll 1$ et $\omega R/c \gg 1$. Le mode HE_{11} peut par conséquent être modélisé par une onde plane dans ces conditions pour calculer la réflectivité.

Dans le cas des modes transverses, la composante de champ suivant z est plus importante que les autres et l'approximation d'une onde plane en incidence normale pour calculer les coefficients de réflexion n'est donc pas valide.

Pour compléter ce raisonnement, la distribution dans l'espace des $k_{//}$ du mode fondamental HE_{11} et du mode transverse TE_{01} a été étudiée. Pour cela, le champ électromagnétique planaire a été décomposé dans une base d'ondes planes.

Tout d'abord avant d'expliquer les résultats, il est nécessaire de rappeler la définition du cône de lumière introduite dans 2.2.2. Les valeurs de $k_{//}$ telles que $k_{//} < n_{sup}k_0$ définissent un cône dans l'espace (k_x, k_y, ω) avec n_{sup} l'indice du superstrat ($n_{sup} = 1$ dans le cas de l'air).

Si une onde a un vecteur d'onde planaire $k_{//} < n_{sup}k_0$, alors l'onde de lumière est dans le cône de lumière et elle peut être extraite vers le superstrat au coefficient de réflexion près.

Dans l'autre cas ($k_{//} > n_{sup}k_0$), l'onde est à l'extérieur du cône de lumière : elle est donc en réflexion totale. Une onde plane en incidence normale n'a par définition pas de composante de vecteur d'onde planaire : $k_{//} = 0$.

Dans le cas de l'étude sur la validité de l'approximation en onde plane du point de vue de la réflectivité, la distribution dans l'espace des $k_{//}$ permet de mieux percevoir l'évolution du coefficient de réflectivité : plus la distribution est centrée autour de l'origine, plus le mode ressemble à une onde plane en incidence normale. De plus si la plupart de la distribution est à l'extérieur du cône de lumière alors on pourra s'attendre à un coefficient de réflexion élevé.

HE_{11} a le maximum de sa distribution pour le vecteur d'onde $k_{//} = 0$ (fig. 3.13(a)) ce qui est donc en accord avec les remarques de (Constantin et al., 2002). En effet Constantin et al. qui a étudié les cavités en micropilier avait remarqué que HE_{11} était le seul mode à avoir un maximum d'émission uniquement sur l'onde $k_{//} = 0$, les autres modes ayant plusieurs maxima dont un au moins en $k_{//} \neq 0$.

De plus les rayons pour lesquels le coefficient de réflexion de mode fondamental était similaire à celui d'une onde plane en incidence normale, ont une majorité de leur décomposition en ondes planes contenue dans le cône de lumière. Cependant ce critère sur la répartition dans l'espace des $k_{//}$ n'est pas une condition suffisante. En effet pour $r \sim 100nm$, on peut remarquer sur la figure 3.13(a) que la majorité de la distribution est dans le cône de lumière mais comme la composante du champ électrique suivant z n'est pas négligeable par rapport aux autres, le modèle d'onde plane pour le calcul de la réflectivité n'est plus valide et on constate que pour cette valeur de rayon, on a bien des valeurs différentes entre le calcul 3D exact et le calcul issu de l'onde plane.

A l'opposé le mode transverse TE_{01} , pour lequel le modèle de l'onde plane en incidence normale est faux

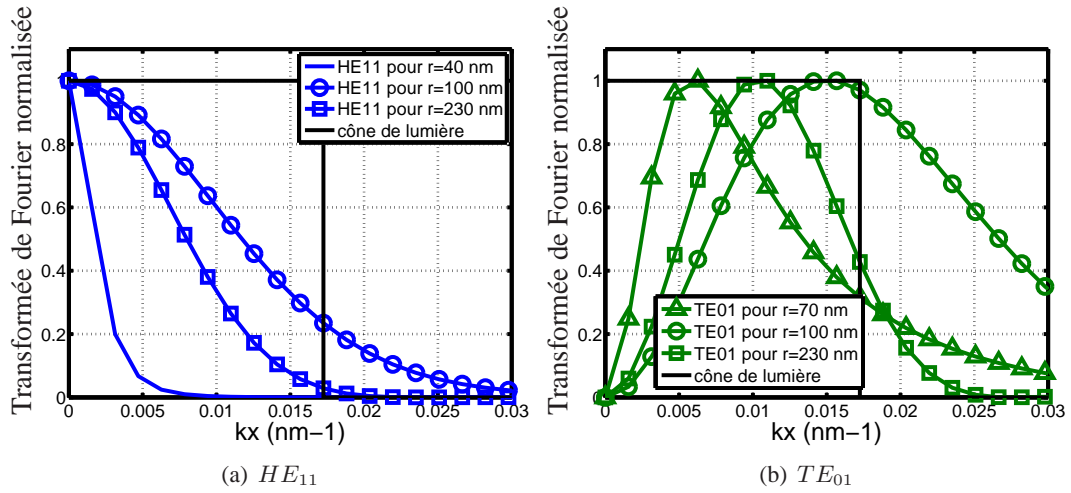


FIGURE 3.13 – Transformée de Fourier normalisée du champ électrique des modes guidés HE_{11} (a) et TE_{01} (b). La longueur d'onde est égale à 380 nm et $k_y = 0$.

en raison de la nature transverse de l'onde, n'est jamais centré sur l'origine. Le maximum de la distribution de ce mode dans l'espace des $k_{//}$ évolue entre le vecteur d'onde planaire fondamental et un maximum pour $R = 100\text{nm}$ (fig 3.13(b)) pour ensuite décroître. Ce comportement est en accord avec l'évolution du coefficient de réflexion : lorsque $R \sim 100\text{nm}$, la réflectivité est maximum et la décomposition en onde plane est le plus à l'extérieur du cône de lumière. Lorsque $R \gg 300\text{nm}$, TE_{01} est confiné dans le nanofil (l'indice effectif est proche de n_{co}) et le coefficient de réflexion est semblable à celui d'une onde plane en incidence oblique.

3.2.4 Directivité

La directivité des modes guidés dépend de cette distribution en onde plane. Le mode fondamental dont la décomposition en onde plane est centrée sur $k_{//} = 0$ aura son champ lointain centré également sur 0. Au contraire les modes transverses TE_{01} et TM_{01} ne seront jamais centrés sur 0. Ce paramètre sera important pour réaliser des sources lumineuses en optique intégrée ou dans des applications liées à la projection.

De plus d'après la figure 3.14, on constate qu'il existe tout comme pour la réflectivité, un régime intermédiaire lorsque le mode guidé n'est pas totalement déconfiné dans la gaine ou confiné dans le nanofil, pour lequel le champ lointain du mode guidé est assez large angulairement. Par ailleurs plusieurs maxima sont présents dans ce régime intermédiaire. Lorsque le mode est assez confiné pour n'avoir plus qu'un seul maximum, la largeur angulaire du champ lointain se réduit ensuite avec l'augmentation du rayon du nanofil. La distribution est calculée à partir d'une carte de champ FDTD mesurée juste après la sortie du nanofil.

Des mesures expérimentales du champ lointain du mode fondamental dans des micropiliers de $GaAs$ sont présentées dans (Rigneault et al., 2001). Les auteurs avaient remarqué un élargissement de l'angle de diffraction du mode pour les piliers dont le diamètre était inférieur à $5\mu\text{m}$ environ. Il y a également plusieurs maxima sur les diagrammes de rayonnement expérimentaux des piliers de faible diamètre. Au delà de ce diamètre critique, la diffraction du mode était semblable à celle d'une cavité planaire.

Les modes transverses ont une symétrie cylindrique, par conséquent leur émission en champ lointain est de forme conique. Comme on peut le constater sur la figure 3.14, l'ouverture angulaire du cône de champ lointain des modes transverses ne semble pas converger vers un angle : plus le rayon augmente, plus l'angle du cône diminue et plus le diagramme est étroit.

Il ne suffit pas de choisir un rayon de nanofil important pour avoir un champ lointain très directif. En effet, il a été démontré précédemment que les modes apparaissent successivement au fur et à mesure que le rayon augmente. Par conséquent quelque soit le rayon du nanofil, il existe toujours des modes guidés pour lesquels

la divergence du champ transmis est importante. L'émission en champ lointain a été observée expérimentalement sur des nanofils de ZnO (Johnson et al., 2003) lors d'une émission stimulée de la cavité (nanolaser), les simulations numériques de cette publication amènent à une conclusion similaire.

Dans la zone monomode, le champ transmis sera maximum dans la direction du nanofil.

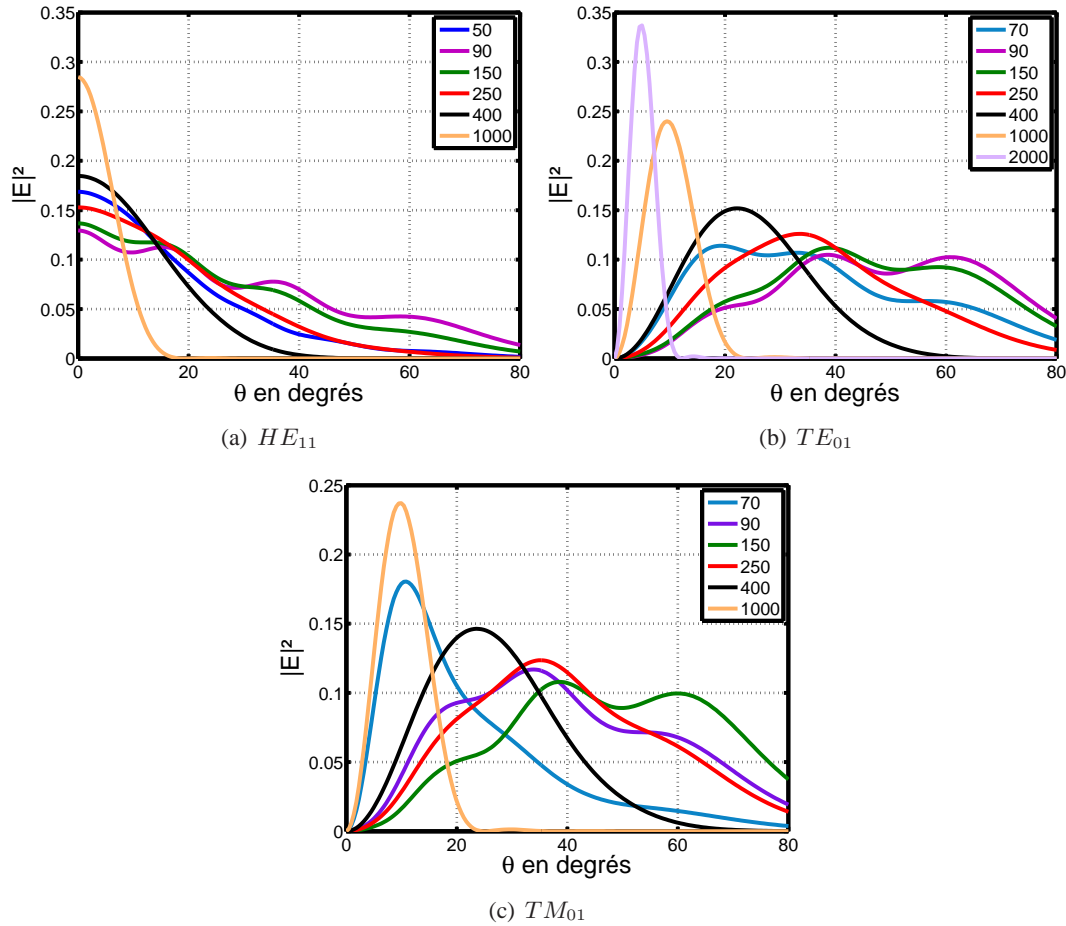


FIGURE 3.14 – Diagramme de rayonnement en champ lointain des trois premiers modes guidés d'un nanofil pour différents rayons en nm à la longueur d'onde de $380nm$. L'augmentation du rayon provoque une réduction de la largeur du cône d'émission.

3.3 Les modes de galerie

3.3.1 Généralités

Dans un milieu diélectrique de forme circulaire tel qu'un disque, une sphère ou un cylindre, de la lumière peut circuler à l'intérieur de la structure par réflexion totale interne sur les bords. Ce phénomène a été mis en évidence par Lord Rayleigh en 1910 (Rayleigh, 1910).

Les interférences entre les ondes créent un mode propre dit mode de galerie (whispering gallery mode, WGM, en anglais). Seules des longueurs d'onde particulières permettent l'existence du mode : il est nécessaire que la lumière retourne à son point de départ en phase pour interférer de manière constructive avec elle-même.

Les modes 1 et 2 sont représentés sur la figure 3.15, le mode 1 correspond à une résonance Fabry Péro. Le mode 0 qui n'est pas représenté, correspond à un mono-pôle.

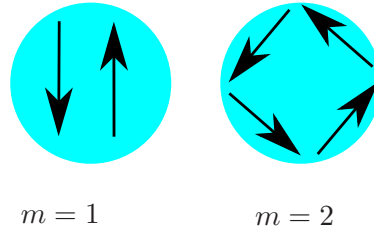


FIGURE 3.15 – Détails de la circulation de la lumière pour les modes de galerie 1 et 2.

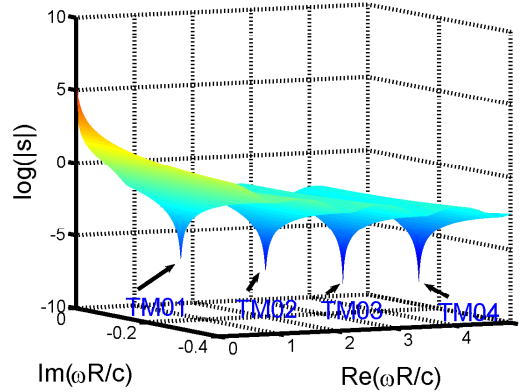
Le calcul des fréquences pour lesquels existent des modes de galerie est un problème classique de la littérature (Rahman and Kumar, 2007; Rusakov et al., 2007; Smotrova and Nosich, 2004). Tout comme les modes guidés le long du fil, les champs électromagnétiques doivent satisfaire à une équation d'Helmholtz et à des conditions aux limites. En revanche les modes seront soit transverses électriques, soit transverses magnétiques, il n'y a pas de polarisation hybrides.

En suivant le même raisonnement que dans le chapitre précédent, les expressions des composantes de champs axiales sont établies, puis l'application des conditions aux limites conduit à l'équation :

$$n_{cl}J_m(kRn_{co})H'_m(kRn_{cl}) - \beta n_{co}H_m(kRn_{cl})J'_m(kRn_{co}) = s = 0 \quad (3.24)$$

avec m qui est également l'indice azimuthal et H la fonction de Hankel de première espèce. L'indice n numérote les différents modes d'une même famille par ordre d'apparition. Pour la polarisation TE, $E//e_z$, elle est donc notée WGE et $\beta = 1$, et pour la polarisation TM, $H//e_z$, elle est notée réciproquement WGH et $\beta = 1/n_{co}^2$. La définition des modes transverses est différente pour les modes guidés et les WGM.

Il faut résoudre dans le plan complexe l'équation 3.24 pour trouver des longueurs d'onde de résonance correspondant aux WGM. La fréquence réduite obtenue est donc complexe du type : $\omega R/c = \omega' R/c - i\omega'' R/c$. La figure 3.16 montre un exemple dans le cas de la polarisation TM.

FIGURE 3.16 – Recherche dans le plan complexe des modes WGH_{0n} à partir de l'équation 3.24.

Les fréquences réduites permettant l'existence des premiers WGM sont présentées dans le tableau 3.3. On constate que plus l'indice azimuthal m est grand, plus la partie imaginaire de la fréquence réduite est faible.

Les résonances des modes de galerie ont été observées sur des microfils et des nanofils de GaN (Mair et al., 1998) et de ZnO (Czekalla et al., 2008; Nobis et al., 2004; Zhang et al., 2009). Pour les microfils, le rayon étant très grand devant la longueur d'onde d'émission, une approximation d'onde plane appliquée à un guide hexagonal est très souvent utilisée pour interpréter l'espacement entre les pics. Cette approximation n'est plus valide pour les fils de petits diamètres (sub-longueur d'onde) comme le fait remarquer Nobis et al. (Nobis and Grundmann, 2005).

m	modes WGH	modes WGE
0	$0.92 - i0.14$ (WGH_{01}) et $2.2 - i0.168$ (WGH_{02})	$0.35 - i0.2$ (WGE_{01}) et $1.62 - i0.18$ (WGE_{02})
1	$1.48 - i0.18$	$0.92 - i0.14$
2	$1.92 - i0.19$	$1.46 - i0.086$
3	$2.387 - i0.1$	$1.99 - i0.048$

TABLE 3.3 – Fréquences réduites $\omega R/c$ de résonances des modes de galerie d'un fil circulaire dans l'air.

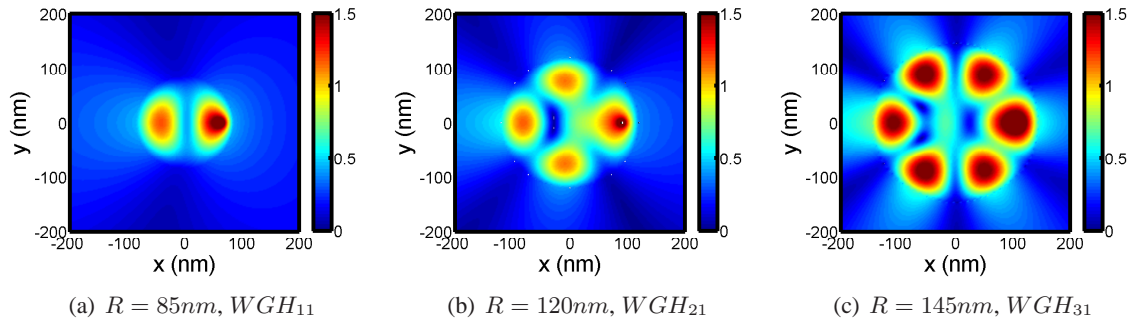
3.3.2 Propriétés

Le facteur de qualité Q du mode de galerie est défini par :

$$Q = \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda} = \frac{\omega'}{\omega''} \quad (3.25)$$

Pour une longueur d'onde d'émission donnée, le mode de galerie existera pour une gamme de rayons comprise entre $R \pm R/2Q$. Ainsi lorsque le facteur de qualité est faible, le mode est peu sélectif en dimension spatiale. Par ailleurs une partie imaginaire importante signifie que le mode sera très évanescent sur les bords du nanofil.

La figure 3.17, présente la distribution des cartes de champ magnétique des premiers modes de galerie WGH . Les champs ont été calculés par la méthode intégrale de frontière (Boundary Element Method BEM) dont la méthode est expliquée dans cet article (Yashiro and Ohkawa, 1985) et a été développé au laboratoire par S. Boutami.

FIGURE 3.17 – Carte de champ magnétique des modes de galerie TM. Cette carte a été obtenue en excitant le mode par un dipôle situé à une distance de $0.9 \times R$ sur l'axe $y = 0$ avec $\lambda = 380nm$.

Pour les applications aux lasers qui nécessitent des cavités très sélectives, l'indice du matériau est important et/ou les rayons sont grands devant la longueur d'onde afin d'obtenir des ordres élevés de modes de galerie (Nowicki-Bringuier et al., 2007; Vahala, 2003). Dans les cas des LEDs à nanofil, le rayon du nanofil est inférieur à la longueur d'onde : les ordres de WGM sont inférieurs à 10 et par conséquent les facteurs de qualité sont moins importants voire de l'ordre de la largeur naturelle de raie du ZnO ou de l' $InGaN$, ce qui permet d'extraire la lumière hors du nanofil tout en profitant de l'effet de cavité sur le renforcement de l'émission du dipôle (cf 3.4).

La lumière issue de ces modes est émise par le côté du nanofil, elle a donc une direction de propagation centrée autour du plan contenant l'hétérostructure du nanofil, ce qui la rend moins intéressante du point de vue de l'extraction. Par ailleurs cette lumière émise dans la gaine peut suivant la direction de l'onde, être en réflexion totale à l'interface gaine-superstrat.

3.4 Émission spontanée

3.4.1 Définition de la source

Dans cette thèse, l'émission spontanée issue de la déexcitation d'une paire électron-trou est modélisée par l'émission d'une source dipolaire (Petermann, 1979). Habituellement les paires électron-trou dans un matériau tel que le ZnO ou encore le GaN (Schömig et al., 2004) sont localisées dans le plan de l'hétérostructure, ainsi le puits quantique peut être représenté par une collection de dipôles ponctuels incohérents entre eux émettant à la longueur d'onde du puits et répartis uniformément à la surface de l'hétérostructure. J'ai ainsi effectué différentes simulations pour un rayon de nanofil donné, chacune correspondant à une position particulière de dipôle. Les emplacements étaient régulièrement espacés de manière ensuite à reproduire une surface uniforme de sources. Pour reproduire une émission spontanée incohérente, il est indispensable de sommer les intensités des sources et non les amplitudes.

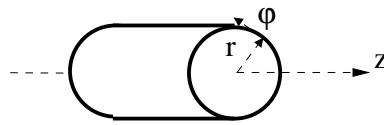


FIGURE 3.18 – Définition des orientations cylindriques de base d'un dipôle dans un nanofil. Toute orientation peut être décomposée en une somme de trois composantes suivant r , φ et z .

Toute orientation de dipôle dans un nanofil peut être décomposée dans la base décrite sur la figure 3.18. Quelque soit l'orientation du dipôle le couplage aux modes guidés hybrides qui ont toutes leurs composantes de champ non nulles, sera possible. En revanche, la définition des composantes de champ des modes transverses implique que :

- ▷ un dipôle orienté suivant e_z ou e_r ne pourra pas se coupler aux modes guidés transverses électriques mais aux modes transverses magnétiques ;
- ▷ un dipôle orienté suivant e_φ se couplera à l'inverse, aux modes guidés transverses TE mais pas aux modes TM.

Concernant les modes de galerie :

- ▷ les modes WGE peuvent se coupler aux dipôles verticaux uniquement ;
- ▷ les modes WGH peuvent se coupler aux dipôles orientés suivant e_r ou e_φ .

Ces informations seront utiles pour comprendre comment la source se couple aux différents modes guidés.

L'émission spontanée peut être divisée en deux parties : la puissance guidée et la puissance libre. La première représente la fraction de lumière qui se couple aux modes guidés et qui par conséquent va se propager le long du fil. La puissance libre est la lumière qui sort directement du nanofil depuis l'hétérostructure, elle représente le couplage aux modes de galerie.

Il y a deux manières de représenter les propriétés de l'émission spontanée : soit on normalise le résultat par la puissance émise totale dans le fil, soit on normalise par la puissance qu'émettrait la même source dans du matériau massif. Il est plus facile en utilisant la première représentation d'identifier les phénomènes physiques présents. Cependant la deuxième méthode permet de faire une comparaison plus rapide entre les LEDs 2D et les LEDs à nanofils, c'est ce qu'a choisi Maslov dans (Maslov et al., 2006).

Par ailleurs le rapport entre la quantité de lumière émise dans un nanofil et celle qu'émettrait la même source dans du matériau massif, est inversement proportionnel au rapport des temps de vie radiatif τ_R entre le nanofil et le matériau massif. Comme il a été vu dans la partie 2.2.2, le rendement quantique interne du puits quantique est meilleur si le temps de vie radiatif est faible. On cherchera donc à avoir une énergie spontanée importante dans le nanofil par rapport au massif pour obtenir un temps de vie radiatif dans le nanofil plus faible que dans le massif.

Cependant la valeur du temps de vie non radiatif τ_{NR} n'est pas égale entre le massif et les nanofils. En effet d'après ce qui a été vu dans la partie 2.3.1, τ_{NR} pour les nanofils devraient être plus grand que celui du massif (sous réserve que le taux de recombinaison non radiatif en surface soit négligeable). Ainsi une structure ayant un bon rendement d'extraction mais un grand τ_R pourra être néanmoins bien meilleure qu'une LED classique.

Pour les deux types d'hétérostructure, l'émission spontanée va être décrite dans un premier temps puis le détail de sa composition entre les modes guidés longitudinaux et les modes de galerie sera présenté dans un second temps.

3.4.2 Cas d'un puits quantique axial

Comme il a été vu dans la partie 2.3.2, la LED à nanofil avec une hétérostructure axiale comporte un puits quantique sur une section perpendiculaire à l'axe du fil. Dans le cas des matériaux wurtzites comme ceux étudiés, le puits quantique axial dans un nanofil est polaire car il se situe dans un plan perpendiculaire à l'axe c . Rau et al (Rau et al., 2000) ont remarqué que dans ce cas, l'hétérostructure était semblable à une distribution de dipôles planaires comme représentée sur la figure 3.19.

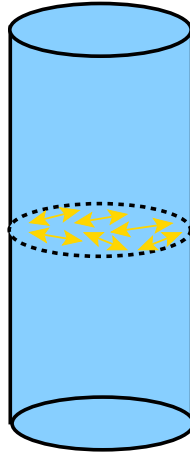


FIGURE 3.19 – Modélisation d'un puits quantique axial sous la forme d'un ensemble de dipôles planaires ponctuels uniformément distribués dans le plan du puits.

Dans un repère cylindrique, toute orientation d'un dipôle planaire peut être décomposée dans la base (e_r, e_φ) . Un dipôle vertical sera au contraire orienté suivant e_z .

3.4.2.1 Émission spontanée

L'émission spontanée totale est différente de celle émise dans le matériau massif car les dimensions de la structure sont proches de la longueur d'onde. En effet l'existence des modes guidés et des modes libres renforcent ou au contraire diminuent l'émission spontanée dans le nanofil comme on le constate sur la figure 3.20. La figure 3.20(a) est très proche de la figure 4.c de (Maslov et al., 2006). Lorsque le rayon tend vers l'infini, on doit retrouver un rapport de 1.

Les modes de galerie provoquent une forte augmentation de l'émission des dipôles orientés suivant e_z . Ce résultat est logique car le champ émis par un tel dipôle est maximum dans la section du nanofil et peut se coupler efficacement aux *WGM*.

Les dipôles orientés dans le plan du puits quantique sont sensibles aux deux types de modes, c'est pour cela que les maxima sont légèrement décalés par rapport à la polarisation z .

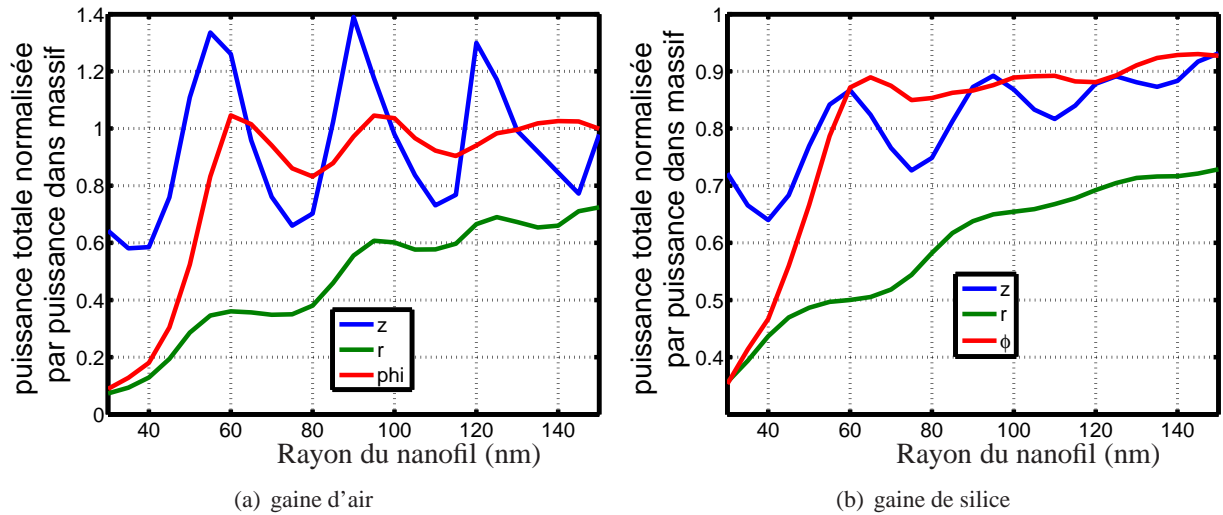


FIGURE 3.20 – Puissance totale émise par une distribution uniforme de dipôle sur une section du nanofil pour les trois orientations possibles ($\lambda = 380nm$) pour une gaine d'air à gauche et une gaine de silice à droite. La puissance est normalisée par la puissance qu'émettraient les mêmes dipôles dans du ZnO massif. Le couplage aux modes de galerie module la puissance émise.

Comme il a été vu précédemment, dans le cas d'un design pour réaliser une LED à nanofil ou bien une source intégrée par exemple, il est important de choisir le rayon qui permettra un renforcement de l'émission. Ainsi pour une gaine d'air, le rayon $R = 60nm$ dans la zone monomode et sinon $R = 100nm$ semblent être des valeurs préconisées. Pour une gaine de silice, la modulation de la puissance émise par les modes est beaucoup moins importante car le facteur de qualité des modes de galerie est beaucoup plus faible en raison de la petite différence d'indice entre la gaine et le cœur.

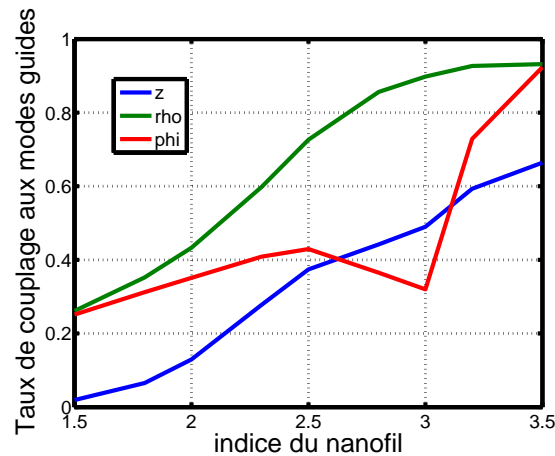


FIGURE 3.21 – Évolution du taux de couplage aux modes guidés en fonction de l'indice du nanofil pour un rayon de $50nm$ et une longueur d'onde de $380nm$.

Pour un rayon de nanofil donné, il est intéressant d'observer l'évolution du taux de couplage aux modes guidés en fonction de l'indice du nanofil. Le résultat est présenté sur la figure 3.21. Pour un rayon de $50nm$, le nanofil est monomode lorsque l'indice est inférieur à 3. Lorsque l'indice du fil augmente, le champ émis par un dipôle est plus confiné dans le nanofil, par conséquent il serait prévisible que le taux de couplage aux modes guidés augmente avec l'indice or ce n'est pas ce qui est observé sur la figure pour la polarisation ϕ . En effet un minimum local est présent autour de l'indice de 3. Ceci est dû au fait que lorsque l'indice du nanofil

augmente, l'indice effectif des modes augmente également alors que leur extension diminue. Par conséquent le taux de couplage augmente jusqu'à l'indice de 2.5, qui correspond au meilleur taux de recouvrement entre le mode fondamental et les différentes sources puis le mode fondamental se confinant au centre du nanofil, le taux de couplage diminue jusqu'à l'apparition des deux modes transverses TE_{01} et TM_{01} .

Lorsque la longueur du nanofil est finie et supérieure à la longueur d'onde d'émission, on pourra supposer que les résultats sur l'émission de la lumière libre restent valables si la source se situe loin des extrémités. En revanche des modes Fabry-Pérot longitudinaux peuvent renforcer l'action des modes guidés sur l'émission spontanée dans le nanofil. Maslov (Maslov et al., 2006) aborde ce problème et propose une formule calculant la puissance émise P dans la cavité en fonction des réflectivités aux extrémités, de la puissance portée par les modes guidés dans un nanofil infini P_0 et des amplitudes du champ électrique émis dans les directions $z+$ et $z-$. Suivant la position de la source le long de l'axe du nanofil et la longueur du nanofil qui influence le nombre de modes longitudinaux, les ondes interférant à cet emplacement seront soit constructives ($P > P_0$) soit destructives ($P < P_0$).

Dans le cas des LEDs, on essaiera néanmoins de limiter la réflectivité aux interfaces de manière à limiter la réabsorption, ce qui diminuera l'impact du phénomène précédent.

3.4.2.2 Puissances guidées et libres

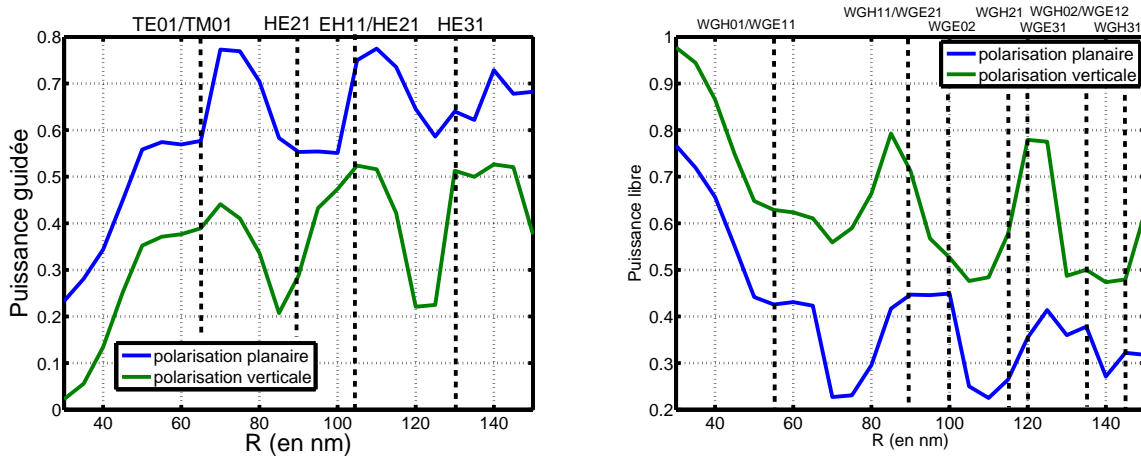


FIGURE 3.22 – Fraction de lumière guidée totale (a) et de lumière libre (b) émises par une hétérostructure axiale dans un nanofil de longueur infinie entouré d'air. Le rayon de coupure des modes est précisé en haut du graphe. La polarisation plane inclut les orientations du dipôle suivant e_φ et e_r et la polarisation verticale représente les dipôles orientés suivant e_z .

La figure 3.22 représente la puissance guidée et la puissance libre émise par un puits quantique axial en fonction du rayon du fil. La puissance libre correspond à la puissance rayonnée par les modes de galerie. On apprend plusieurs choses :

- ▷ Les nanofils ayant un rayon $R < 50nm$, canalisent peu l'émission spontanée sous forme de lumière guidée. En effet dans cette gamme de rayon, le nanofil est monomode et le mode fondamental est très déconfiné : un dipôle situé à l'intérieur du nanofil ne peut pas se coupler avec ce mode dont le champ est principalement à l'extérieur du nanofil.
- ▷ la puissance guidée est modulée par l'apparition successive des modes guidés : lorsqu'un nouveau mode guidé apparaît dans le nanofil, il est tout d'abord très déconfiné, l'émission spontanée qui se situe dans le fil se couple peu au mode. Pour des rayons légèrement supérieurs au rayon de coupure, le mode est plus confiné dans le fil mais le champ est surtout en périphérie du nanofil là où se trouvent le maximum d'émetteurs d'où un maximum de couplage. Pour $R = 110nm$, presque 90% de la puissance émise est guidée le long du fil. Dans la partie monomode, le maximum de couplage à HE_{11} vaut 56% pour

$$R = 55nm.$$

- ▷ La courbe représentant la puissance libre est modulée par l'apparition des modes de galerie qui existent dans la section du fil.

Ces valeurs seront différentes pour une gaine de silice.

Une analyse plus fine des propriétés des modes permet de mieux comprendre les fluctuations des courbes. Par exemple, dans le cas du passage mono à multimode, on constate sur la courbe 3.22(a) une brusque augmentation du pourcentage de lumière guidée vers $R = 65nm$. Entre 65 et $80nm$ de rayon, on est éloigné du rayon de résonance d'un mode de galerie. Le pourcentage de lumière guidée sera donc *a priori* plus important que pour la lumière libre. Si l'on s'intéresse à la polarisation planaire uniquement, les dipôles sont orientés suivant e_r et e_φ , ils peuvent donc se coupler aux modes TE (cas e_φ) et aux modes TM (cas e_r). Toutefois d'après la figure 3.8, le mode TE_{01} se confine beaucoup plus rapidement que le mode TM_{01} , par conséquent la brusque variation de la courbe 3.22(a) au rayon $R = 65nm$, est due au couplage de la source au mode TE_{01} .

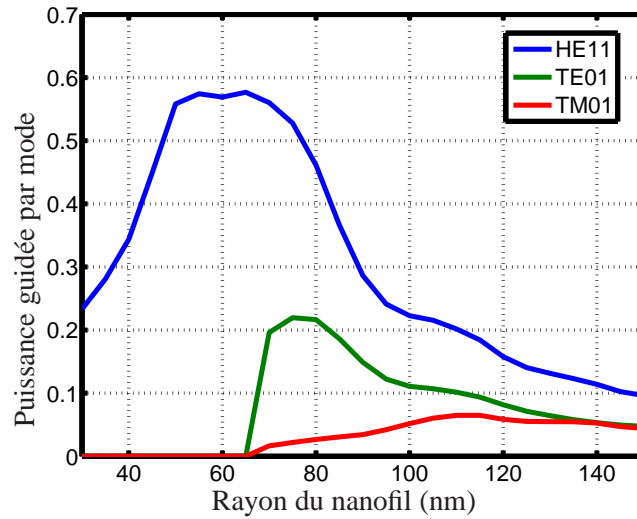


FIGURE 3.23 – Fraction de lumière guidée sur les trois premiers modes d'un fil entouré d'air à la longueur d'onde de $380nm$ dans le cas d'une hétérostructure axiale avec une distribution de dipôles planaires uniforme (polarisation planaire). Le mode TE_{01} se couple beaucoup à la source juste après le rayon de coupe.

La portion de lumière guidée suivant les différents modes est présentée sur la figure 3.23, la part du guidage sur le mode TE_{01} est nettement supérieure à celle de TM_{01} , ce qui est bien en accord avec les précédentes remarques. Le couplage au mode fondamental diminue lorsque le rayon du nanofil augmente car le mode se confinant au centre du fil, il se couple avec un nombre de plus en plus restreint de sources.

Pour ce qui concerne la lumière rayonnée directement hors du nanofil, les maxima de la puissance libre semblent correspondre à des couplages aux modes de galerie (fig. 3.22(b)). Les dipôles de la polarisation planaire sont polarisés dans le plan de l'hétérostructure d'après ce qu'il a été vu précédemment. Par conséquent la source peut se coupler à la fois aux WGE et WGH . Cependant, le couplage sur les WGM n'est pas toujours efficace puisque pour certains modes, il n'y a aucun maximum associé. En effet, les modes guidés et les WGM sont en compétition. Par conséquent pour un rayon donné, il est difficile d'intuiter sur lesquels de ces modes, l'émission spontanée se couplera le plus. Par exemple pour un rayon de fil de $110nm$ environ, avec une polarisation verticale, les modes guidés EH_{11} et HE_{21} ainsi que le mode libre WHE_{02} sont présents mais le couplage sur les premiers modes est plus important. Inversement pour un rayon de $130nm$, le couplage aux modes de galerie est prédominant par rapport au mode guidé HE_{31} .

3.4.3 Cas d'un puits quantique radial

Comme il a été vu dans la partie 2.3.2, l'hétérostructure radiale est constituée d'un cœur généralement dopé négativement, entouré d'un anneau dopé positivement et entre lesquels se situe le puits quantique. Dans ce cas, selon la littérature, le puits radial est non polaire si le fil est de forme hexagonale (l'axe c est l'axe de croissance) ou bien polaire si le fil est de forme triangulaire (axe a). Par ailleurs dans le cas du matériau GaN , contrairement au puits polaire, l'émission d'un puits non polaire n'est plus isotrope dans le plan du puits mais majoritairement orientée dans la direction φ plutôt que dans la direction z (Rau et al., 2000), cependant ce résultat ne semble pas être partagé par l'ensemble de la communauté scientifique. Par conséquent, nous supposons par la suite que les dipôles planaires sont uniformément distribués en polarisation (entre φ et z), comme représenté sur la figure 3.24.

Dans le cas d'un puits quantique radial, la polarisation verticale correspond aux dipôles dont l'orientation est perpendiculaire à la surface du puits : c'est l'orientation e_r . Tout comme lors de l'étude de l'hétérostructure axiale, cette polarisation verticale sera également étudiée en parallèle de la polarisation planaire.

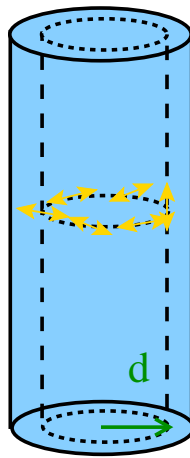


FIGURE 3.24 – Modélisation d'un puits quantique radial sous la forme d'un ensemble de dipôles planaires ponctuels uniformément distribués dans le cercle correspondant à la position du puits à une hauteur donnée.

3.4.3.1 Émission spontanée

Dans l'étude de l'émission spontanée issue d'un puits radial, un paramètre important à prendre en compte est la position radiale du puits. Soit d la distance entre la source et le centre du nanofil, il est évident que d doit être inférieur au rayon R .

La figure 3.25 représente la puissance totale émise normalisée par la puissance totale émise par un dipôle dans du matériau massif. Tout d'abord, quelque soit le rayon, on constate que la puissance totale émise augmente avec la valeur de d en raison du nombre croissant d'émetteurs qui est proportionnel à la surface du puits quantique (la densité de sources étant supposée uniforme).

L'orientation planaire est caractérisée par des dipôles polarisés suivant φ et z qui peuvent donc se coupler aux modes $WGEs$ et $WHMs$. De fortes résonances de l'émission spontanée sont présentes sur le graphe pour des rayons de valeurs légèrement supérieures aux rayons de coupure des modes de galerie. De plus, pour un rayon donné correspondant à une résonance, l'émission spontanée est maximale lorsque le puits quantique se situe à distance $d = 0.9R$, ce qui revient à placer le puits au maximum de champ du mode de galerie.

Lorsque le nanofil est de longueur finie, des remarques identiques à celles du puits axial peuvent être faites à la différence que la source étant étendue sur toute la longueur du nanofil, il faut moyenner le résultat suivant z pour obtenir le facteur correctif f de la puissance guidée d'un mode. Ce facteur ne dépend plus de la longueur totale du nanofil mais seulement des coefficients de réflexion aux extrémités (Maslov et al., 2006). Comme les

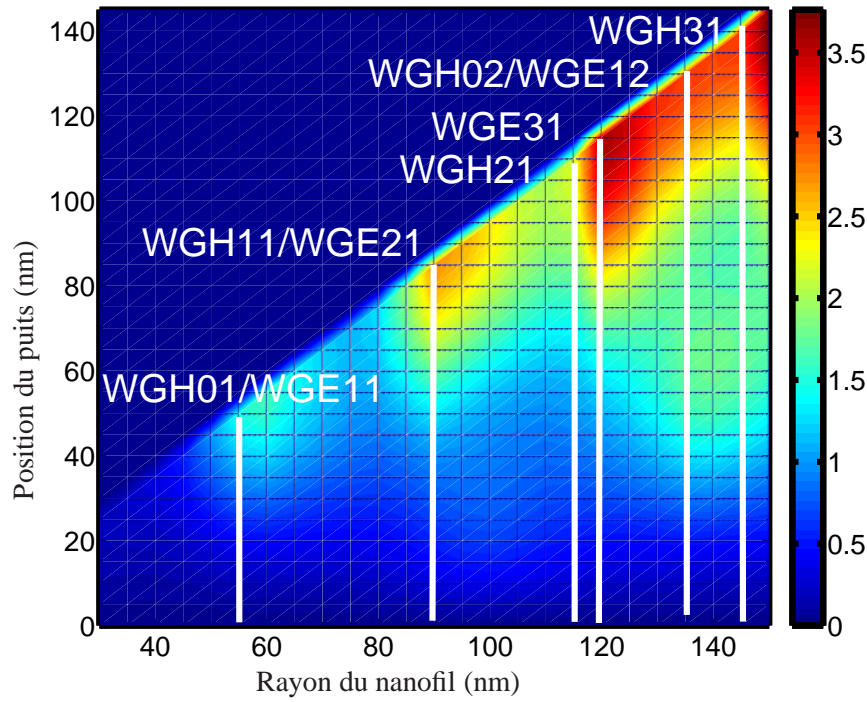


FIGURE 3.25 – Puissance émise par un puits quantique radial dans un nanofil en fonction du rayon du fil (abscisses) et de la position du puits (ordonnées) pour une longueur d'onde d'émission de 380nm (unité arbitraire). La puissance est modulée par l'apparition successive des modes de galerie.

coefficients de réflectivité sont différents pour chacun des modes, le résultat sur la puissance guidée totale est obtenue en pondérant la puissance guidée de chacun des modes par le facteur f correspondant.

3.4.3.2 Puissances guidées et libres

Pour la position particulière $d = 0.9R$ correspondant au maximum d'émission spontanée, étudions maintenant la répartition entre les modes guidés et les modes libres. La figure 3.26 représente les puissances guidée et libre en fonction du rayon du nanofil, normalisées par la puissance totale émise par la source. Tout comme dans le cas de l'hétérostructure axiale, les puissances sont modulées par l'apparition successive des modes.

Rappelons que dans le cas de la polarisation planaire, le couplage aux modes de galerie TE et TM est possible. D'après l'évolution de la puissance libre présentée sur la figure 3.26(b), le couplage est plus important lorsque des modes *WGEs* sont présents en même temps que des modes *WGHs* : toutes les orientations de dipôle peuvent se coupler aux modes. Dans la cas de l'orientation verticale qui correspond à une polarisation du dipôle suivant e_r , seul le couplage aux modes *WGHs* est autorisé.

3.5 L'extraction de lumière

Pour réaliser le design d'une LED à nanofil unique, il faut prendre en compte les résultats sur l'émission spontanée et ceux concernant l'extraction des différents modes. Dans cette partie, nous avons donc combiné les résultats des parties précédentes pour évaluer le rendement d'extraction lié aux modes guidés et aux modes de galerie. Dans cette approche du premier ordre, nous avons négligé toute réabsorption dans le fil (réabsorption par le puits quantique ou par les porteurs libres).

Il a donc été vu que les modes de galeries ne sont pas guidés le long du fil, ils sont directement extraits depuis le puits quantique. En revanche, ils ne sont pas avantageux pour l'extraction car cette lumière a une direction de propagation proche de celle perpendiculaire à l'axe du nanofil.

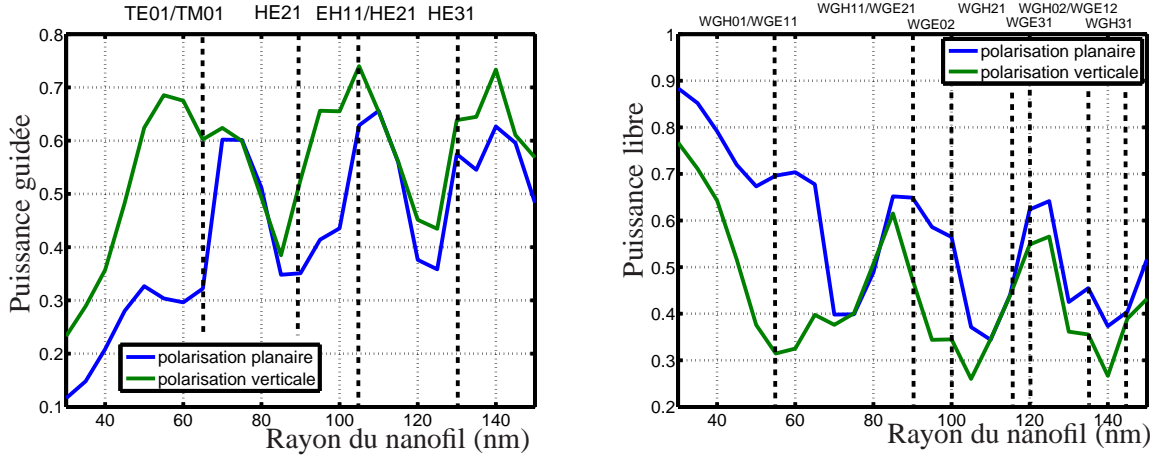


FIGURE 3.26 – Fraction de lumière guidée totale (a) et de lumière libre (b) émises par une hétérostructure radiale dans un nanofil entouré d'air. Le rayon de coupure des modes est précisé en haut du graphe. Le puits quantique est situé à une distance de $0.9 \times R$ du centre. La polarisation plane inclut les orientations du dipôle suivant e_φ et e_z et la polarisation verticale représente les dipôles orientés suivant e_r .

A contrario rappelons que les modes guidés propagent la lumière vers les extrémités du nanofil mais ont des coefficients de réflexion non nuls (cf 3.2.3).

On considéra dans cette partie que le nanofil est semi infini afin de décorrélérer les effets d'extraction et les effets de cavité liés à la longueur finie du nanofil. Le rendement d'extraction sera donc égal à la puissance extraite vers la partie supérieure sur la puissance émise vers le haut, ce qui est équivalent à considérer que pour un nanofil de taille finie, la réflexion sur le substrat est idéale ($r = 1$). Par ailleurs, la lumière réfléchi à l'interface avec l'air est donc supposée définitivement perdue.

Soit $\eta_{ext-mod}$, le rendement d'extraction dû uniquement aux modes guidés, qui constitue un minimum pour le rendement d'extraction total. Il est défini par :

$$\eta_{ext-mod} = \sum_{modes} (1 - R_{mod}) P_{mod} \quad (3.26)$$

avec P_{mod} la puissance guidée émise par mode. R_{mod} représente la réflectivité du mode sur tous les autres modes.

En supposant que l'on récupère toute la lumière issue des modes de galerie, le rendement d'extraction global sera donc égal :

$$\eta_{ext} = \eta_{ext-mod} + P_{WGM} \quad (3.27)$$

avec P_{WGM} la puissance émise sur les modes de galerie. Cela constitue une limite haute à l'extraction lumineuse. La valeur de 1 peut être atteinte si toute la lumière guidée est extraite.

En normalisant P_{mod} par la puissance qu'émettrait la même source dans du matériau massif, la définition de $\eta_{ext-mod}$ permet de considérer à la fois le rendement d'extraction et la modification de la durée de vie radiative par rapport à du massif (effet Purcell). En revanche le rendement η_{ext} lorsque P_{WGM} est également normalisé par la puissance émise dans du massif ne correspond pas exactement au rendement quantique externe.

Lorsque P_{mod} et P_{WGM} sont normalisées par la puissance émise dans la structure, l'étude de l'évolution de $\eta_{ext-mod}$ permet d'évaluer les capacités de la structure à extraire la lumière : on estime alors le rendement d'extraction.

Ainsi ces deux définitions de $\eta_{ext-mod}$ sont intéressantes pour le design d'une LED à nanofil.

3.5.1 Cas d'un puits quantique axial

Il a été vu auparavant que l'émission spontanée était modulée par l'apparition successive des modes de galerie. Cependant dans le cas d'une hétérostructure axiale, les dipôles sont orientés dans le plan du puits quantique par conséquent l'effet est moins important que pour les dipôles orientés suivant l'axe du nanofil. Par ailleurs l'émission spontanée avait tendance à augmenter avec le rayon du nanofil.

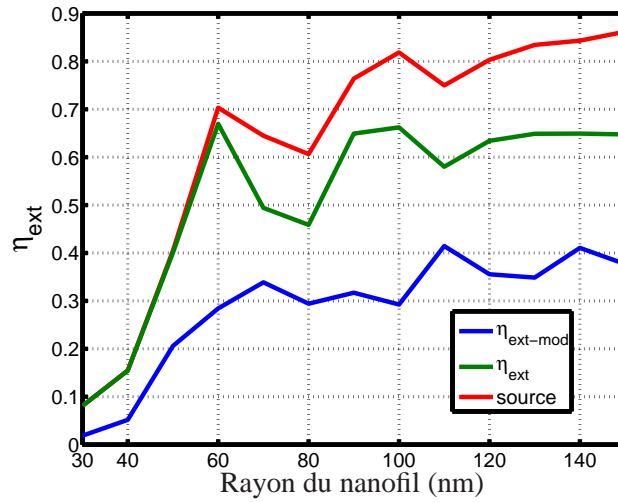


FIGURE 3.27 – Rendements d'extraction vers l'air d'un puits quantique axial dans un nanofil semi-infini pour une longueur d'onde d'émission de $380nm$. Les résultats sont normalisés par rapport la puissance émise dans du massif. La courbe rouge représente la puissance émise dans la structure normalisée par la puissance qu'émettrait la même source dans du matériau massif.

La figure 3.27 représente les différents rendements d'extraction avec une normalisation par la puissance émise dans du massif. Le rendement d'extraction réel sera compris entre les courbes de $\eta_{ext-mod}$ et η_{ext} .

Les fluctuations de $\eta_{ext-mod}$ sont dues à l'apparition successive des modes guidés, notamment pour un rayon de $70nm$ environ et $110nm$. La courbe rouge qui représente l'émission spontanée dans un nanofil par rapport à du matériau massif, est la limite absolue du rendement d'extraction : on ne peut pas extraire plus de lumière que celle qui est générée. Un design approprié de l'extrémité du nanofil améliorera l'extraction (cf 3.2.3).

En considérant cette fois uniquement le rendement d'extraction, il ne faut plus tenir compte de la puissance de la source dans du massif mais uniquement de la puissance générée à l'intérieur du nanofil. Il faut chercher à extraire le plus de lumière guidée parmi celle qui est générée, c'est ce qui est présenté sur la figure 3.28. Le rendement global est proche de 100% pour des fils de très petit rayon, en effet il n'y a quasiment pas de lumière guidée, toute la lumière est émise à l'extérieur du nanofil. En revanche, la courbe rouge de la figure 3.27 montre que la lumière rayonnée par les sources est très faible pour ces tailles de fils, ce qui signifie que le temps de vie radiatif sera augmenté impliquant un rendement quantique interne plus faible.

Deux valeurs singulières de rayon de fil semblent ressortir de cette étude. Dans la zone monomode, le rayon de $50nm$ semble intéressant car il combine à la fois une valeur d'émission spontanée importante (0.67) et une bonne extraction des modes guidés (55% d'après la figure 3.28). Dans la zone multimode, c'est le rayon de $110nm$ qui permet la plus grande extraction (55%).

Il sera préférable de choisir la zone autour de $50nm$ car le pic d'extraction est beaucoup plus large que celui de $110nm$, ce qui permet une plus grande marge d'erreur pour la réalisation technologique.

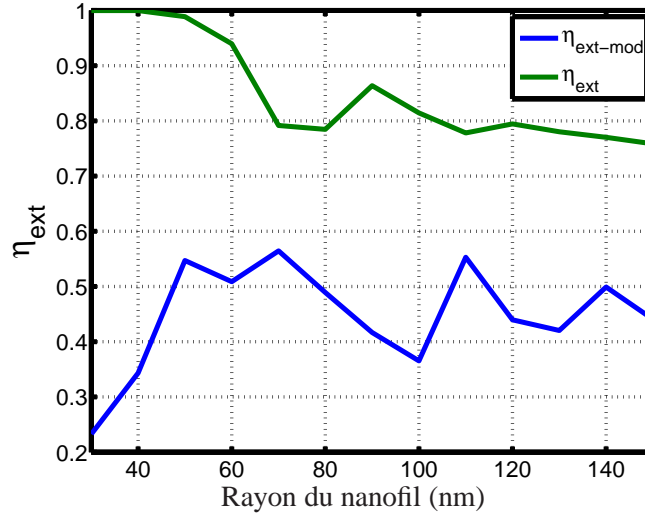


FIGURE 3.28 – Rendements d’extraction vers l’air d’un puits quantique axial dans un nanofil semi-infini pour une longueur d’onde d’émission de 380nm . Les résultats sont normalisés par la puissance émise dans le nanofil.

3.5.2 Cas d’un puits quantique radial

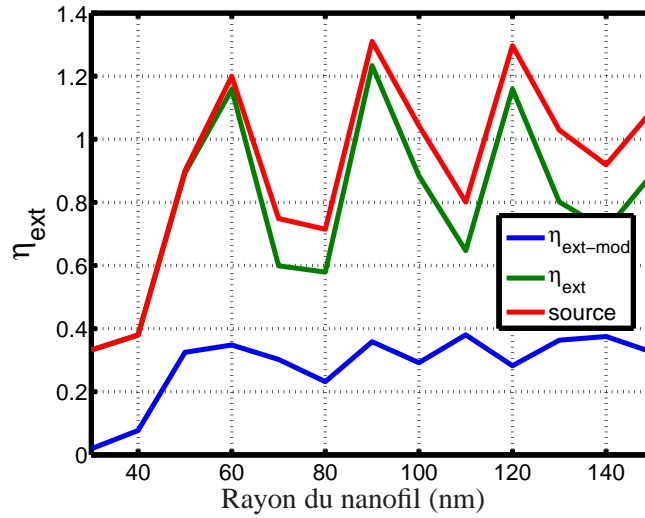


FIGURE 3.29 – Rendements d’extraction vers l’air d’un puits quantique radial dans un nanofil semi-infini pour une longueur d’onde d’émission de 380nm . La position du puits quantique est située à une distance $d = 0.9R$. Les résultats sont normalisés par rapport à la puissance émise dans du massif. La courbe rouge représente la puissance émise dans la structure normalisée par la puissance qu’émettrait la même source dans le matériau massif.

Le rendement d’extraction n_{ext} normalisé par la puissance émise dans du massif, est présenté sur la figure 3.29. Il est nettement plus modulé par l’apparition successive des modes de galerie que dans le cas du puits axial. En effet il a été vu dans la partie sur l’émission spontanée, que la polarisation planaire rassemble les dipôles orientés suivant e_z et e_φ , et que l’orientation dipolaire suivant e_z est celle qui se couple le mieux aux modes de galerie. Il est ainsi prévisible que le rendement d’extraction dépende également de ces modes.

A partir d’un rayon de 50nm ($\lambda = 380\text{nm}$), le rendement d’extraction du à la lumière guidée oscille légèrement autour de la valeur de 35%. Cette valeur est nettement inférieure aux valeurs obtenues avec un puits axial : le puits quantique radial ne favorise pas l’émission sous la forme de lumière guidée.

Concernant le rendement global on obtient des valeurs supérieures à 1. En effet d’après la courbe rouge

de la figure 3.29 qui représente la puissance émise dans la structure, pour certains rayons correspondant à des rayons de coupure de modes de galerie, la puissance rayonnée dans un nanofil est plus grande que celle dans un matériau massif. Le choix d'un rayon égal à 60, 90 ou 120nm sera donc favorable également au rendement quantique interne. Pour connaître quantitativement la variation de η_{int} , il faudrait également connaître la durée de vie non radiative.

Les rendements d'extraction normalisés par la puissance émise dans la structure sont présentés sur la figure 3.30. Dans la zone monomode c'est, comme pour le puits quantique axial, le rayon de 50nm qui permet d'extraire le maximum de lumière guidée avec un rendement de 32%. Dans la zone multimode c'est, de la même manière, pour un rayon de 110nm que l'extraction est la meilleure (46%). Ces valeurs sont bien sûr inférieures à celle du puits quantique axial qui renforce l'émission sur les modes guidés par rapport au puits radial.

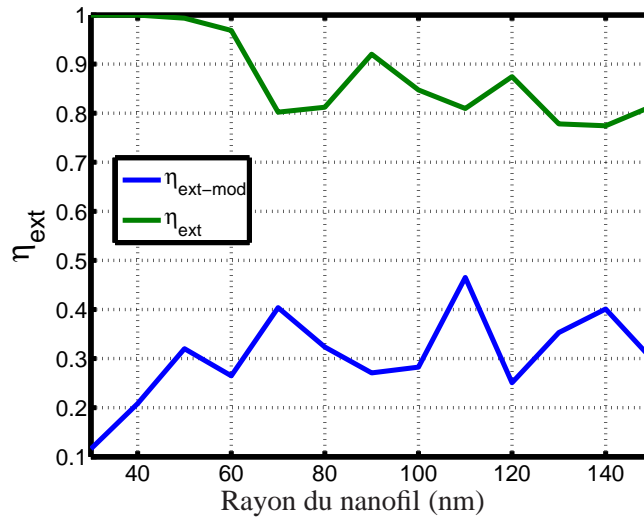


FIGURE 3.30 – Rendements d'extraction vers l'air d'un puits quantique radial dans un nanofil semi-infini pour une longueur d'onde d'émission de 380nm. La position du puits quantique est située à une distance $d = 0.9R$. Les résultats sont normalisés par la puissance émise dans le nanofil.

A partir de ces différents résultats numériques, différentes expériences ont été envisagées afin de confronter la théorie et l'expérience. Les principales approches vont être présentées dans la partie suivante.

3.6 Vérifications expérimentales

Au cours de cette thèse, effectuer des expériences permettant de valider les calculs théoriques ne fut pas une chose aisée. En effet, les épitaxeurs ont à ce jour encore peu de contrôle sur la taille des fils et leur densité. Seuls quelques groupes à l'échelle mondiale maîtrisent la croissance des nanofils.

Au sein de Carnot Éclairage, de manière plus concrète, les fils obtenus par MBE sont trop petits et trop denses pour pouvoir être détachés et observés séparément (ils seront utilisés dans le chapitre suivant). Au contraire les fils *GaN* MOCVD ont un diamètre supérieur en général à 1μm. A l'opposé, les fils *ZnO* MOCVD n'ont pas de puits quantiques.

Néanmoins deux validations expérimentales ont été envisagées. La première consiste en l'étude de micropiliers gravés de *GaAs*. La seconde étude porte sur l'observation des modes guidés et des modes de galerie dans des fils de *GaN* fabriqués par MOCVD.

3.6.1 Étude du champ lointain de micropilier de $GaAs$

Bien que cette étude n'ait pas pu être mise en œuvre au moment de la rédaction de la thèse, je présente le principe de cette expérience et les résultats théoriques correspondants.

3.6.1.1 Cadre de l'étude

Le but de cette étude est de vérifier la fluctuation du couplage de l'émission spontanée sur les modes guidés, en fonction du diamètre du nanofil dans le cas des hétérostructures axiales.

Afin d'obtenir un résultat quantitatif, il faut pouvoir observer pour des nanofils de différents diamètres, le couplage aux différents modes guidés. La mesure du champ lointain des modes obtenu en bout de fil est une solution.

Il a été vu précédemment que le mode fondamental avait un champ lointain assez large angulairement dans la gamme de rayons étudiée. Par conséquent pour pouvoir distinguer le mode fondamental des autres modes, il est nécessaire de réaliser des fils non pas de diamètre constant mais de diamètre de plus en plus grand au fur et à mesure que l'on se rapproche de l'extrémité du nanofil afin de réduire la largeur angulaire du champ lointain du mode fondamental. Cependant afin de ne pas réaliser de couplage entre les modes, l'adiabaticité du nanofil doit être conservée en choisissant un angle d'ouverture assez faible (typiquement 10°). Le schéma de la structure finale est représenté sur la figure 3.31.

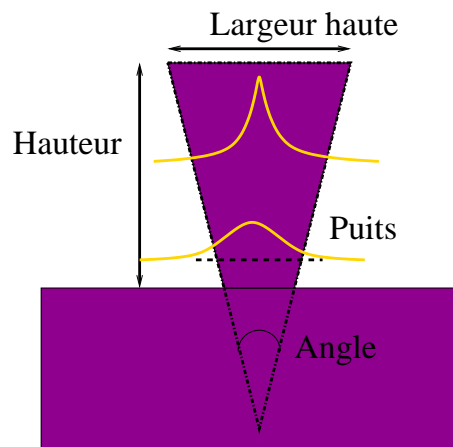


FIGURE 3.31 – Schéma d'un micropilier utilisé pour l'expérience. Le champ du mode fondamental se confine avec l'augmentation du rayon du nanofil (en jaune).

Pour réaliser cet objet particulier en forme de cône inversé, je me suis tournée vers le matériau $GaAs$. En effet le $GaAs$ est mieux maîtrisé que le GaN au niveau de la croissance. De plus la longueur d'onde d'émission des puits quantiques d' $AlGaAs$ se situe autour de $950nm$ ce qui permet d'observer des effets similaires à ceux du GaN ou du ZnO mais pour des dimensions plus grandes puisque un calcul reste valable tant que $\omega R/c$ est constant, ce qui rend plus facile la fabrication. En revanche l'indice du $GaAs$ vaut 3.5 à $950nm$. Par conséquent toutes les simulations ont dû être refaites pour obtenir les bonnes valeurs de couplages ainsi que les nouvelles propriétés des modes guidés.

L'équipe SP2M à l'INAC et en particulier Julien Claudon sait réaliser ce type d'échantillon comme on peut le constater sur la figure 3.32. Différents puits quantiques émettant à des longueurs d'ondes légèrement différentes, peuvent être placés le long du fil. Des diagrammes de champ lointain en fonction de la longueur d'onde d'émission seront ainsi mesurables en fonction de la position du puits dans le fil. En corrélant les résultats expérimentaux aux simulations, cette manipulation validerait à la fois l'adiabaticité de la propagation de la lumière dans le fil en taper et permettrait de déduire les taux de couplage aux modes.

Les dimensions typiques d'un micropilier semblable au schéma 3.31 sont une hauteur de $12\mu m$, une largeur à la base de $200nm$ et une largeur au sommet de 2 à $3\mu m$, ce qui correspond à un angle à la base de 10 à 15° .

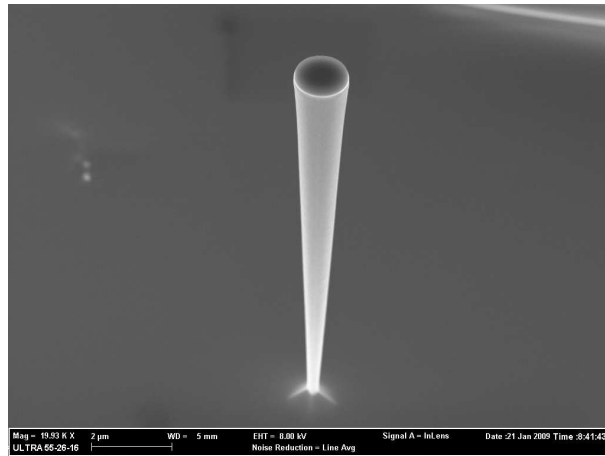


FIGURE 3.32 – Image MEB d'un micropilier de $GaAs$

3.6.1.2 Étude numérique

Les simulations ont été réalisées en FDTD, puis exploitées à l'aide de Matlab. L'approche est de tout d'abord calculer les taux de couplage du puits quantique aux différents modes guidés, puis de calculer le champ lointain de chacun des modes dans cette structure en forme de cône inversé. Le résultat final est égal à la somme des champs lointains de modes guidés pondérés par leur taux de couplage. Les courbes décrivant la puissance totale émise, ainsi que celles sur la puissance libre et la puissance guidée sont données dans l'annexe A.4. Seuls les résultats de simulation sur le champ lointain seront présentés dans cette partie.

La structure simulée est semblable au schéma 3.31 avec une hauteur de pilier de $12\mu m$ et une largeur en haut de $2.2\mu m$. Quatre hauteurs de puits différentes seront présentées.

Pour un diamètre du fil au niveau du puits de $200nm$, le mode fondamental est le seul mode guidé présent. La largeur à mi-hauteur est de 16° environ. Lorsque le diamètre du fil augmente, les autres modes guidés apparaissent mais, dans la gamme de diamètres étudiée, le couplage au mode fondamental reste toujours très important, comme on peut le constater sur la figure 3.33. Le champ lointain global qui devrait être observé est représenté sur la figure 3.34. Les différences entre une position de puits à un diamètre de 200 ou $300nm$ ne seront pas faciles à observer. En revanche à partir d'un diamètre de $400nm$, le couplage au mode fondamental est moins important ce qui permet un élargissement du diagramme de champ lointain jusqu'à une forme de marche pour un diamètre de $500nm$.

Ainsi les puits devraient être positionnés à des hauteurs correspondant successivement à un diamètre de $200nm$, $300nm$, $400nm$, et $500nm$. Le pas de $100nm$ entre les diamètres permet d'être moins sensible aux incertitudes sur les valeurs des diamètres.

3.6.1.3 Description de l'expérience

L'expérience consisterait donc à pomper le fil et récupérer le champ lointain à l'extrémité du pilier. Le schéma de l'expérience construite par M. Richard (Richard, 2004), est présenté sur la figure 3.35. Les puits quantiques ayant une longueur d'onde d'émission légèrement différente, le monochromateur permettrait de filtrer le signal par puits. L'observation se ferait dans un plan de Fourier pour pouvoir reproduire les résultats numériques précédents. Un objectif à grande ouverture numérique est nécessaire pour voir le spectre le plus large possible angulairement. La focale de $180mm$ est choisie de manière à pouvoir séparer spatialement le

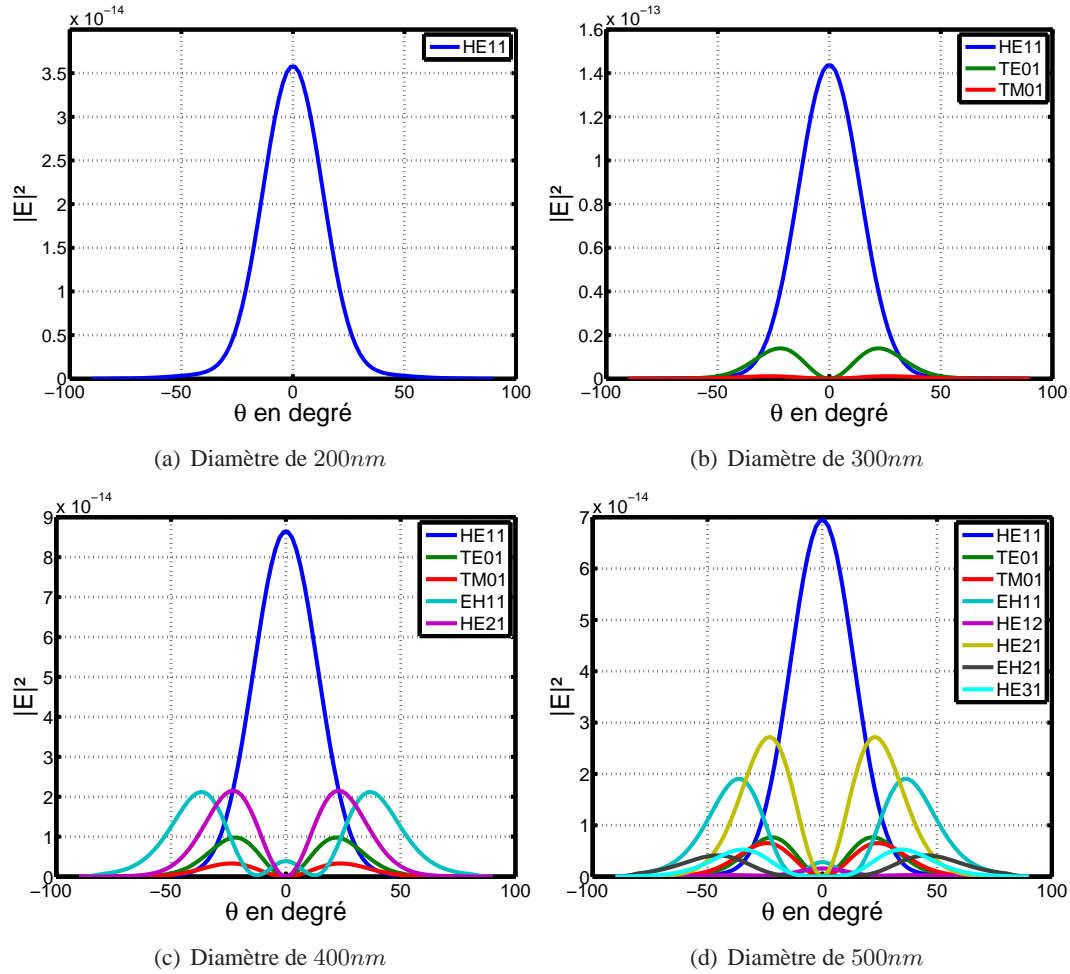


FIGURE 3.33 – Champs lointains à l’extérieur d’un micropilier des différents modes guidés pondérés par leur taux de couplage pour différents diamètres de puits quantique. Pour un diamètre de fil au niveau du puits de 200nm, l’émission est monomode tandis que pour les diamètres supérieurs l’émission est multimode. La hauteur totale du micropilier de forme conique vaut $12\mu m$.

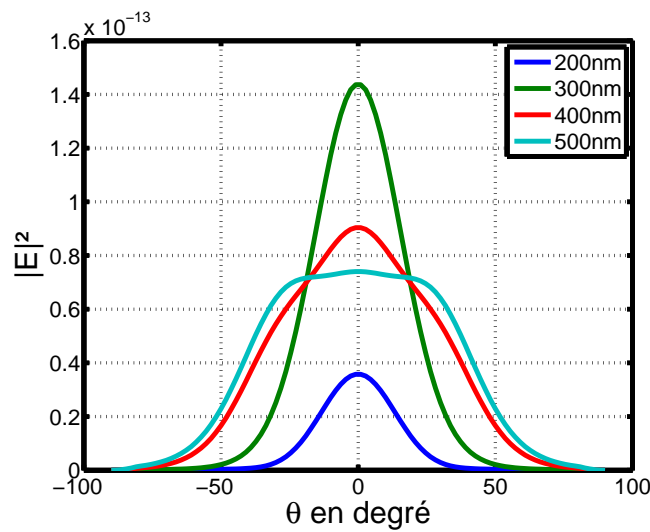


FIGURE 3.34 – Champ lointain global récupéré en haut d’un micropilier de diamètre au sommet $2.2\mu m$ pour différents diamètres de puits quantique dans le micropilier en forme conique. Plus le diamètre du puits quantique est grand plus celui-ci est proche du sommet du pilier. La hauteur totale du micropilier est égale à $12\mu m$.

plan image réel du plan de Fourier.

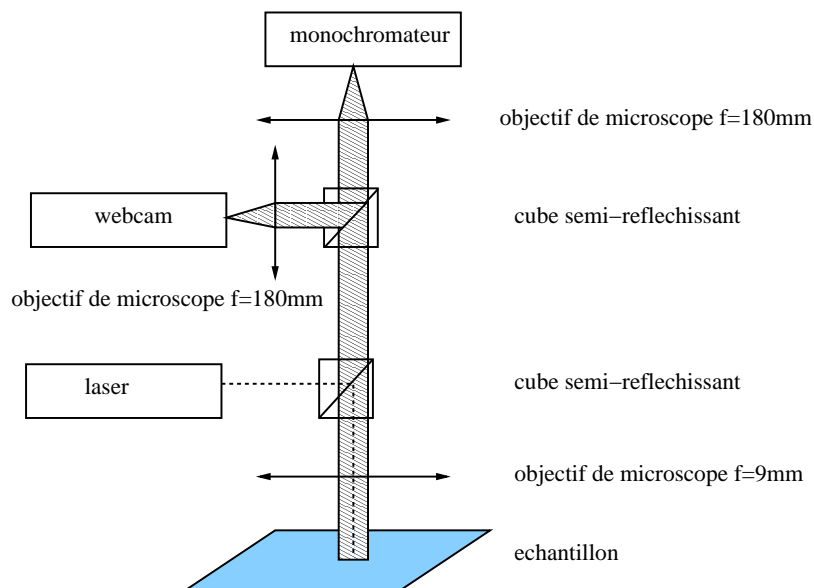


FIGURE 3.35 – Schéma de l'expérience permettant de mesurer le champ lointain en fonction de la longueur d'onde.

L'expérience n'a pas encore pu être réalisée à ce jour en raison de problèmes techniques sur le bâti de croissance du *GaAs*.

3.6.2 Caractérisation de micro-photoluminescence sur des fils uniques de *GaN*

J'ai observé des nanofils de MOCVD sur un microscope confocal, le but étant de réaliser des observations qualitatives sur des nanofils en *ZnO* ou *GaN*.

Il est possible d'exciter les échantillons de deux manières différentes :

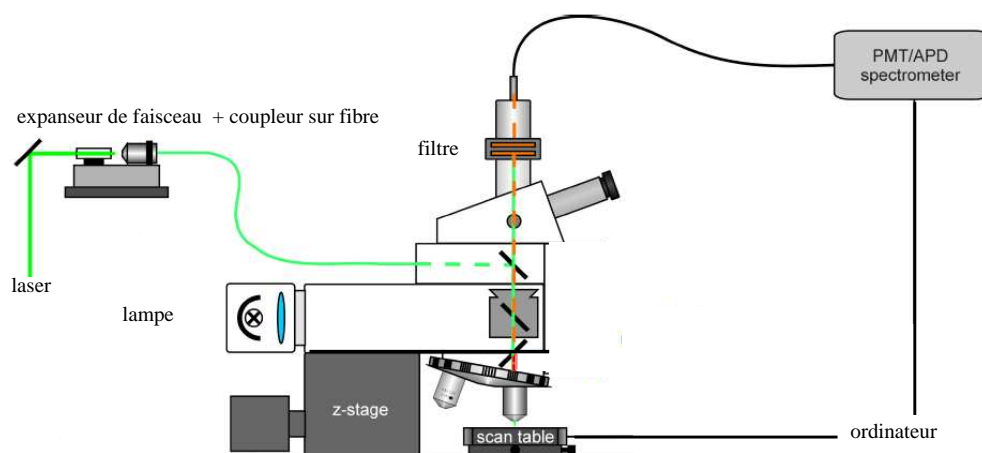
- ▷ soit le faisceau laser arrive par un objectif situé au dessus de l'échantillon. Par conséquent, la lumière récupérée par ce même objectif et dirigée vers l'analyseur réseau, correspond à la zone qui est directement pompée par le laser, figure 3.36(a).
- ▷ soit le faisceau laser arrive par un objectif situé en dessous de l'échantillon. Dans ce cas la zone de pompe est découplée de la zone observée avec l'objectif supérieur. Cette configuration permet d'observer un emplacement différent du point de pompage. En revanche il est nécessaire d'avoir un substrat transparent et poli pour pouvoir transmettre le faisceau laser, figure 3.36(b). Toutes les expériences ont été réalisées à température ambiante.

Dans tous les cas, le laser est un laser argon-krypton permettant d'émettre de 350nm à 680nm . Il est également possible d'éclairer l'échantillon avec une lampe blanche, ce qui permet d'observer les objets et leur environnement d'une part et de faire la focalisation du microscope sur l'échantillon d'autre part.

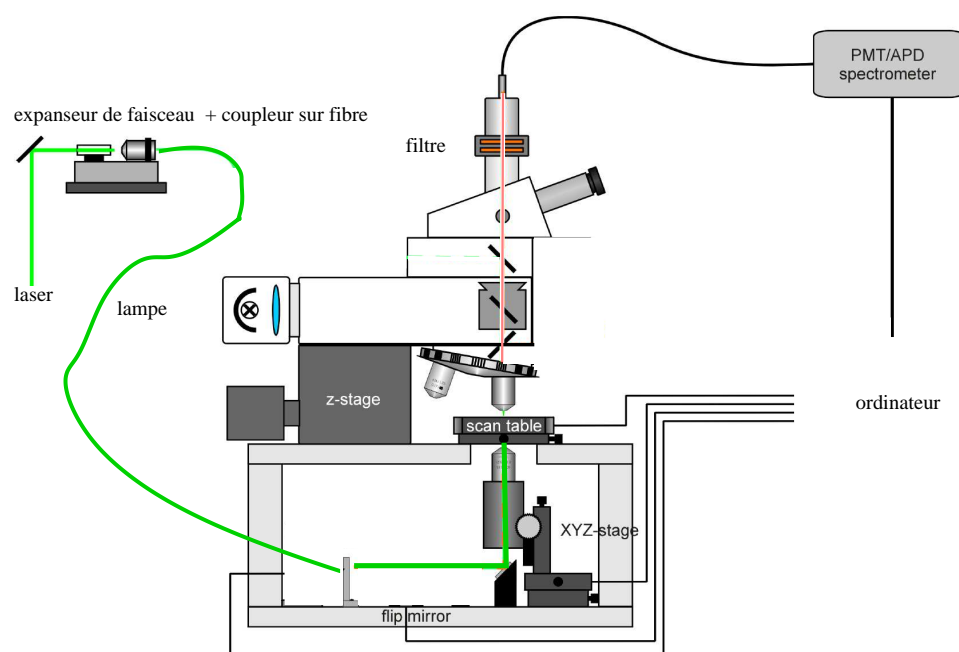
Le signal issu de l'échantillon est ensuite transmis par le microscope soit à une caméra couleur, soit à une fibre optique reliée à un spectromètre. Le diamètre de la fibre optique contrôle la taille du spot analysé.

L'échantillon étudié repose sur une platine piézoélectrique commandée par ordinateur. Cette particularité permet de réaliser des cartographies : des relevés spectraux sont mesurés sur tous les points d'une grille spatiale fictive déterminée par l'utilisateur.

Lorsque l'échantillon est éclairé par le haut, le point de pompage n'est pas fixe sur l'échantillon puisque celui-ci se déplace avec la platine. En revanche lorsque l'excitation s'effectue par le bas, le dispositif de



(a) Injection par dessus, l'illumination est mobile par rapport à l'échantillon



(b) Injection par dessous, l'illumination est fixe par rapport à l'échantillon

FIGURE 3.36 – Deux configurations d'injection du laser sur le microscope confocal. Dans tous les cas, la collection de la photoluminescence est mobile par rapport à l'échantillon.

focalisation du laser étant accroché à la platine, cela permet de sonder une zone autour d'un point d'émission, ce qui est particulièrement intéressant dans le cadre de l'étude des nanofils.

Avec un faisceau laser arrivant par le haut, n'ayant pas d'objectif avec une grande résolution dans l'UV, j'ai très souvent préféré utiliser une longueur d'onde de laser de 407nm avec un objectif ayant un grandissement de 100 et une ouverture numérique de 0.9. Cela m'a permis néanmoins d'observer soit des nanofils avec des puits qui émettaient autour de 450nm , soit la bande de défauts des nanofils autour de 540nm . Malheureusement je n'ai pas pu observer des fils de ZnO qui émettent autour de 380nm et n'ont pratiquement pas de bande de défauts.

Avec un faisceau laser arrivant par en dessous, j'ai pu observer à la fois des fils de ZnO et de GaN avec l'objectif $\times 100$ entre autres, au dessus pour collecter la lumière issue de la photoluminescence et un objectif UV à plus faible grandissement en dessous pour transmettre la pompe laser.

Trois configurations vont être présentées dans la suite de ce paragraphe. Dans le premier cas, les nanofils sont étudiés sur leur substrat de croissance (saphir), ils sont alors droits et pour certains échantillons, des puits quantiques sont placés en haut des nanofils. Le but dans ce cas est d'observer le rayonnement à l'extrémité du nanofil.

Ensuite des nanofils couchés sur un objet ont été observés. L'objet fut soit une lame de verre soit, dernière configuration, une grille utilisée habituellement pour des observations au TEM. L'objectif du premier cas était d'observer qualitativement le guidage de la lumière rayonnée par des puits quantiques. Le second cas visait à mesurer sur des spectres de photoluminescence des résonances caractéristiques dues aux modes de galerie et aux modes guidés.

Différentes techniques sont utilisées pour coucher les nanofils. Une première approche consiste à frotter l'objet contre l'échantillon provenant de la croissance. Cette technique a l'avantage d'être très rapide, en revanche les nanofils peuvent être cassés loin de leur base et il est très difficile de contrôler leur densité. Une deuxième approche consiste à mettre un bout de l'échantillon dans un microtube en polypropylène rempli d'une solution d'isopropanol puis à placer le tout dans un bain d'ultrasons pendant dix minutes. Ensuite à l'aide d'une pipette de précision, quelques gouttes de nanofils en solution sont prélevées puis déposées sur le nouveau support. Enfin il faut attendre que l'isopropanol s'évapore. La densité des fils est ainsi mieux maîtrisée. Une dernière technique consiste à gratter l'échantillon de nanofil à l'aide d'un objet acéré tel qu'une lame de rasoir puis à faire tomber les fils sur le second support. Ces trois techniques sont valables à la fois pour des fils de ZnO et de GaN .

3.6.2.1 Nanofils droits sur substrat de croissance

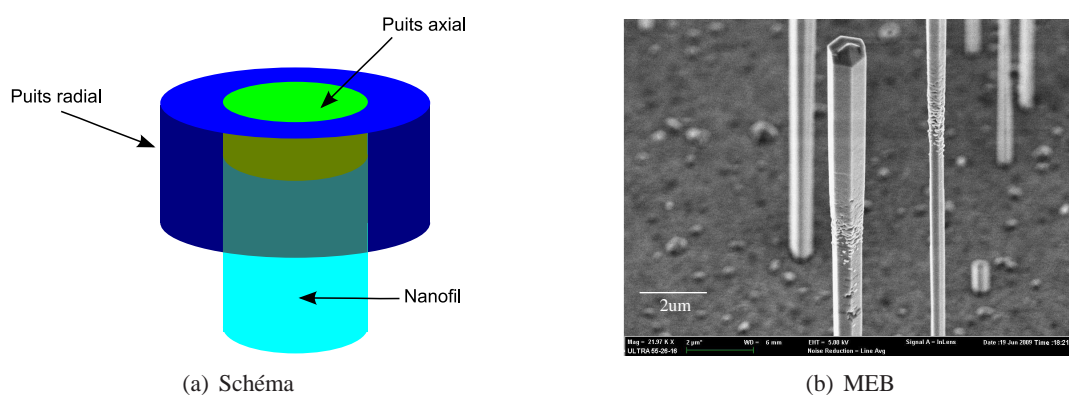


FIGURE 3.37 – Échantillon 652 comportant des puits quantiques en bout de nanofils. Il comporte plusieurs puits axiaux et au moins un puits radial. Le schéma présente en transparence les deux types de puits.

L'échantillon 652, présenté sur la figure 3.37, correspond à des nanofils de GaN MOCVD ayant 5 puits

quantiques axiaux et au moins un puits quantique radial en haut des fils comme représenté sur la figure .

La longueur d'onde du laser est de 350nm et l'objectif du microscope est un objectif UV à miroir $\times 52$, NA 0.6. La présence des puits annihile l'émission du GaN .

Le laser est focalisé sur le haut du fil de manière à exciter les puits. Des cartographies ont été réalisées dans les plans xy et xz avec z l'axe vertical correspondant également à l'axe de croissance des nanofils. Ainsi la réponse en longueur d'onde d'une zone rectangulaire est mesurée. Pour représenter la manière dont la lumière est émise dans une gamme de longueur d'onde donnée, on somme la réponse spectrale dans cette gamme en tout point de la cartographie de manière à obtenir une image en fausse couleur de l'émission de cette zone.

Le faisceau laser est focalisé au sommet d'un fil, une première cartographie dans le plan xy qui correspond à la section du fil est présentée sur la figure 3.38 pour deux gammes de longueurs d'onde. La taille du faisceau laser est de l'ordre de $2\mu\text{m}$, le diamètre des fils observés est du même ordre de grandeur. Il n'est pas possible de connaître exactement la taille du fil observé car la résolution optique n'est pas suffisante.

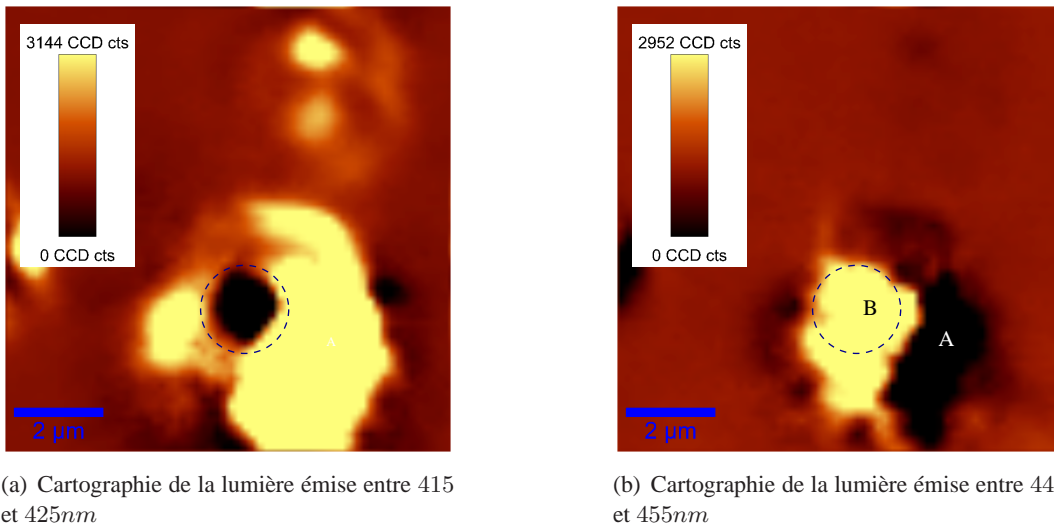


FIGURE 3.38 – Cartographies de photoluminescence dans le plan xy (section du nanofil) pour une longueur d'onde d'excitation de 350nm . La position verticale correspond approximativement à l'extrémité supérieure du nanofil. Le point de focalisation se déplace avec le point d'observation. La taille du faisceau laser vaut approximativement $2\mu\text{m}$. Le cercle bleu en pointillés représente schématiquement le bord du nanofil. La zone A correspond à une émission centrée sur 450nm en périphérie du nanofil, la zone B émet autour de 420nm au centre du fil.

On constate l'existence de deux zones. La première au centre du fil émet de la lumière autour de 450nm . La seconde en bord de fil émet au contraire de la lumière autour de 420nm . Les spectres correspondant à un point de chacune des deux zones sont présentés sur la figure 3.39.

Après discussion avec les épitaxeurs, ces pics ont été identifiés comme étant l'émission des puits axiaux pour la zone centrale et des puits radiaux pour la zone périphérique. Ces deux puits n'ayant pas les mêmes épaisseurs ni les mêmes contraintes, ils n'émettent pas à la même longueur d'onde ni avec la même intensité. Une cartographie dans un plan xz confirme ces observations.

Les expérimentations réalisées sur des nanofils droits avaient pour but de déterminer si le signal issu de la photoluminescence était suffisamment important pour pouvoir étudier un nanofil unique à 300K , ce qui est bien le cas avec les puits quantiques et également avec des fils de GaN homogènes (images non présentées). Par ailleurs ces manipulations ont permis de mettre en évidence les propriétés des différents puits quantiques de nanofils MOCVD. Ces observations seront réutilisées pour l'étude du guidage de la lumière dans la partie suivante, réalisée sur des nanofils couchés sur un substrat.

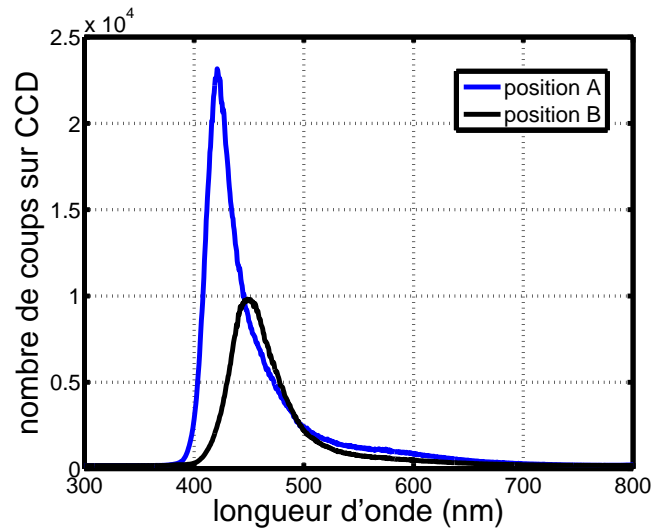
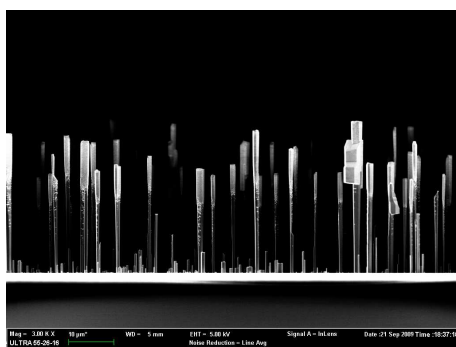


FIGURE 3.39 – Spectres de photoluminescence d'un fil *GaN* MOCVD pour deux positions particulières A et B. La position A correspond à une zone en périphérie du nanofil (puits radial) tandis que la zone B représente le centre du fil (puits axial).

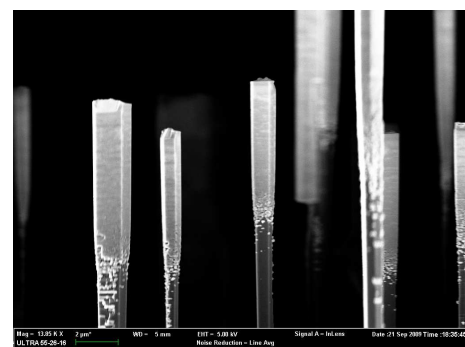
3.6.2.2 Nanofils *GaN* MOCVD couchés sur un substrat de verre

Le but de cette expérience était de vérifier que la lumière issue d'un puits quantique était guidée le long du nanofil. Pour cela les nanofils couchés sur un substrat de verre seront excités par en dessous afin de séparer la zone de pompe de la zone d'observation.

L'échantillon 714 est constitué tout comme l'échantillon 652 de nanofils *GaN* avec plusieurs puits quantiques d'*InGaN* en haut du fil (cf fig. 3.37(a)). Des images MEB de cet échantillon sont présentées sur la figure 3.40. Des nanofils de l'échantillon 714 ont été mis en solution par la technique des ultrasons puis déposés sur une lame couvre-objet en verre (ce procédé n'était plus réalisable sur l'échantillon 652 qui avait été collé sur un support pour l'expérimentation). L'épaisseur d'une telle lame est d'environ 0.15mm ce qui permet à la lumière issue du laser d'être transmise avec le minimum d'aberrations géométriques introduites par la présence de la lame.



(a) Fils 714



(b) Zoom sur la croissance des puits quantiques

FIGURE 3.40 – Images MEB de l'échantillon MOCVD 714. Cet échantillon comporte des puits d'*InGaN* à l'extrémité du nanofil. La qualité cristalline de l'hétérostructure n'est pas homogène sur l'échantillon.

La longueur d'onde du laser d'excitation utilisée est de 350nm afin d'observer la luminescence des puits sur toute leur gamme de longueurs d'onde d'émission. Par conséquent l'objectif de microscope placé au dessus de l'échantillon est un objectif UV à miroir ayant un grandissement de 52 et une ouverture numérique de 0.65 .

La figure 3.41 présente l'image obtenue à la caméra lorsque le faisceau laser est focalisé sur l'extrémité du

nanofils contenant les puits quantiques. La lampe blanche éclaire également l'échantillon. Deux couleurs sont majoritairement présentes au niveau du nanofil : du bleu et du rose. Le domaine d'utilisation de la caméra est celui des longueurs d'onde du visible. Néanmoins, il est possible de visualiser le proche UV qui apparaît dans des teintes de rouges. On constate que la couleur rose est présente surtout dans la zone émettrice alors que le bleu est visible à plusieurs endroits le long du fil.

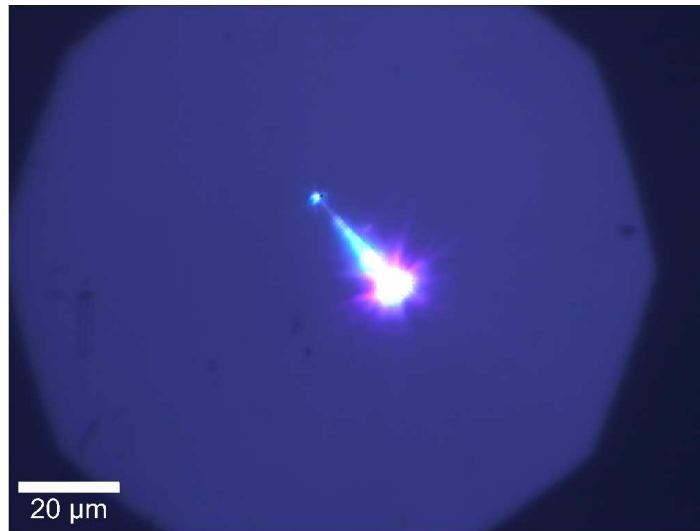


FIGURE 3.41 – Image obtenue à la caméra lors de l'étude par photoluminescence d'un fil de l'échantillon 714 couché sur une lame de verre. Le point de focalisation de laser de pompe se situe à l'extrémité basse du nanofil.

Une cartographie résolue spectralement est un moyen pour comprendre ces observations. Le résultat est présenté sur la figure 3.42.

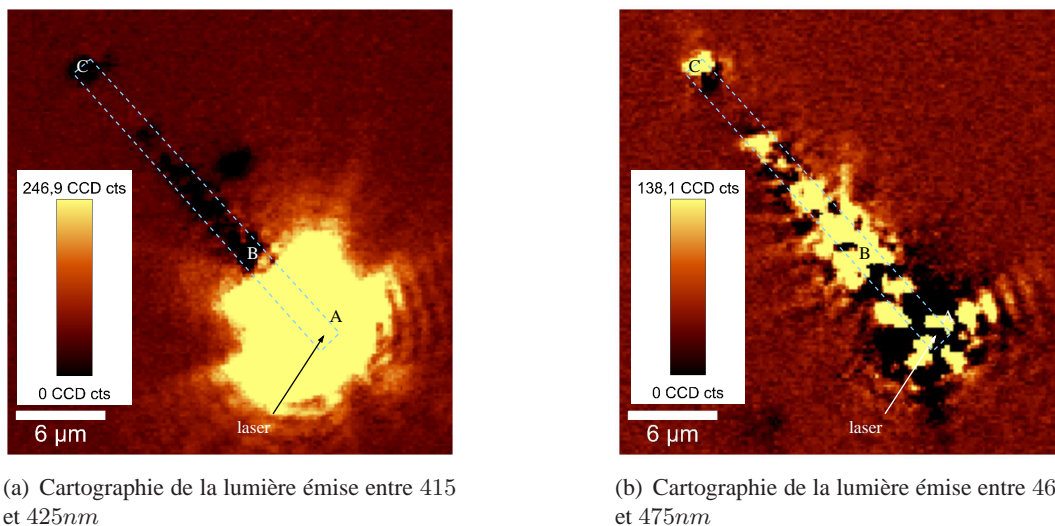


FIGURE 3.42 – Cartographies de photoluminescence dans le plan xy (section du nanofil couché) pour une longueur d'onde d'excitation de 350nm. Le point de focalisation se situe à une extrémité du nanofil. La taille du faisceau laser vaut approximativement 2μm. Le rectangle bleu en pointillé représente la position supposée du nanofil couché sur le substrat de verre. La zone A correspond à une émission centrée sur 420nm à une extrémité du nanofil, les zones B et C émettent autour de 470nm.

On constate la présence de deux pics d'émission, le premier centré autour de 420nm est concentré dans la zone des puits, tandis que le deuxième centré autour de 470nm est émis aux deux extrémités ainsi que sur une

partie du nanofil. D'après les observations réalisées dans la partie 3.6.2.1, les deux pics d'émission peuvent être identifiés comme étant l'émission des deux types de puits quantiques axiaux et radiaux, l'émission à 420nm (resp. 470nm) correspondant aux puits radiaux (resp. axiaux).

Les spectres des trois positions particulières de la cartographie sont affichés sur la figure 3.43. La lumière émise par le puits radial qui ne se situe que sur une extrémité du nanofil, ne semble pas être beaucoup guidée le long du fil puisque le spectre en C ne contient pas un signal intense autour de 420nm . En revanche la lumière issue du puits axial se propage le long du fil tout en étant diffusée, ce qui explique la présence du point dans les tons de bleu sur la figure 3.7. Mais le signal au point C est néanmoins beaucoup plus faible que dans la zone émettrice. Ce phénomène a pu être constaté sur tous les fils étudiés de cet échantillon avec à chaque fois plus ou moins de lumière guidée vers l'extrémité du nanofil pour chacun des puits.

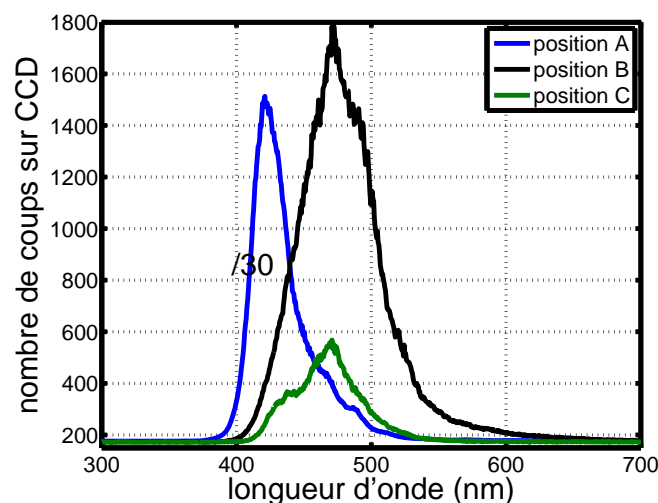


FIGURE 3.43 – Spectres des zones A, B et C. Le graphe de la zone A a été divisé par 30.

Ainsi le nanofil se comporte bien comme un guide d'onde mais les pertes le long du fil sont très importantes. Lorsqu'on observe les images MEB de cet échantillon (figure 3.7), de nombreuses rugosités provoquant de la diffusion lors de la propagation de la lumière sont visibles le long du fil. Sur certains fils, la croissance du puits peut avoir un résultat étonnant non expliqué actuellement. La lumière guidée issue des puits radiaux se couplera à des modes ayant leur champ en périphérie du nanofil. Par conséquent la lumière guidée sera extrêmement sensible à ces rugosités qui extraient la lumière efficacement. Pour les puits axiaux, la lumière guidée est présente sur toute la section du nanofil, ce qui la rend moins sensible à ces rugosités et donc mieux guidée.

3.6.2.3 Nanofils couchés sur une grille TEM

D'après les études théoriques de ce chapitre, des modes guidés et des modes de galerie coexistent dans un nanofil unique. Ces deux types de modes ont été observés séparément dans des publications comme il a été vu précédemment. J'ai cherché tout d'abord à observer ces modes et à vérifier certaines de leurs propriétés.

Les spectres correspondant aux modes guidés le long du fil peuvent être observés aux extrémités du nanofil tandis que les modes de galerie sont visibles au point de focalisation du laser. Pour que les mesures se rapprochent le plus possible du cas du fils droit, il est nécessaire que le fil soit entouré d'air. Cependant pour pouvoir observer les extrémités et le milieu du nanofil, le fil doit être couché sur un substrat. Pour satisfaire à ces différents critères, les nanofils ont été déposés sur une grille ayant des caractéristiques particulières. Cette grille, habituellement utilisée pour réaliser des observations au microscope électronique en transmission (TEM), est constituée d'une grille en cuivre sur laquelle a été déposée une fine couche de carbone d'épaisseur 3nm environ. La partie en cuivre est constituée de trous carrés de largeur $38\mu\text{m}$. Elle est donc suffisamment grande

pour permettre d'avoir des fils pratiquement "entourés" d'air. La membrane en carbone étant très fragile, les fils doivent impérativement être déposés avec la technique des ultrasons.

Les nanofils de l'échantillon 743 ont été déposés sur une grille. Ces fils MOCVD ont été choisis tout d'abord

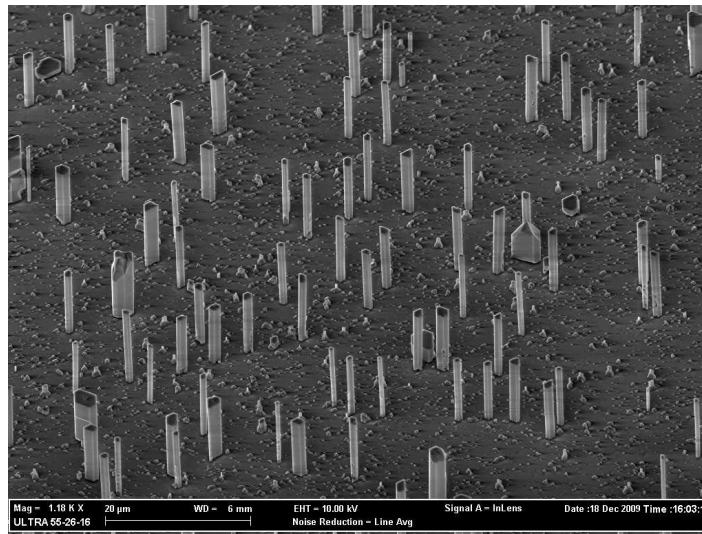
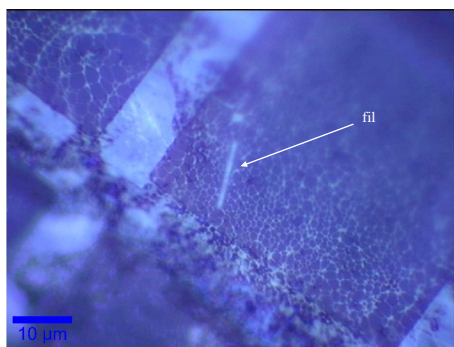


FIGURE 3.44 – Image MEB de l'échantillon 743.

pour leur large bande de défauts permettant une analyse sur une grande gamme de longueurs d'onde afin de pouvoir observer le plus de modes possibles. Ces fils ont de plus une hauteur importante et des diamètres relativement réduits comme présenté sur la figure 3.44. En revanche, la partie supérieure de ces fils a été dopée avec du magnésium, ce qui dégrade les propriétés structurales du nanofil.

Les nanofils ont une densité sur la grille assez faible de manière à pouvoir observer des objets uniques comme sur la figure 3.45(a).

Les nanofils ont été observés avec un éclairage par le dessus afin d'avoir un faisceau laser de taille réduite en utilisant l'objectif ayant un grandissement de 100 avec une ouverture numérique de 0.9. Par conséquent la longueur de pompage est à 407nm . Le résultat est présenté sur la figure 3.7, le laser est focalisé à l'extrémité haute du nanofil. Le guidage de la lumière issue de la bande de défauts est à nouveau observable.



(a) Éclairage avec la lampe blanche



(b) Photoluminescence de la bande de défauts

FIGURE 3.45 – Expérience de photoluminescence en confocal sur des fils de l'échantillon 743 couchés sur une grille TEM.

Des spectres de photoluminescence ont été mesurés au centre du nanofil ainsi qu'à chacune des extrémités. Le résultat est présenté sur la figure 3.46. Les trois spectres correspondent à trois couplages différents entre le laser et le nanofil, ce qui explique les différentes intensités des extrema. Les spectres obtenus aux extrémités du nanofil sont très différents de celui au centre : des résonances sont présentes mais avec un intervalle spectral

différent. En mesurant de manière plus résolue la réponse, l'intervalle entre deux extrema vaut environ :

▷ 0.24eV au centre du nanofil,

▷ 0.018eV aux extrémités.

D'après l'image 3.7, les dimensions très approximatives du nanofil sont une longueur de $12\mu\text{m}$ et un diamètre de $1\mu\text{m}$. Ces valeurs sont donc bien supérieures à la longueur d'onde d'émission de la lumière et par conséquent tout comme dans la littérature, l'approximation d'onde plane est correcte pour l'interprétation des spectres.

L'intervalle spectral entre deux résonances d'une cavité Fabry-Pérot vaut :

$$\Delta E = hc/nL \quad (3.28)$$

avec L la longueur du chemin que parcourt la lumière qui est en résonance et n l'indice du nanofil. Dans le cas d'une cavité Fabry-Pérot, L correspond à deux fois la longueur du nanofil. Dans le cas d'un mode de galerie dans un nanofil de section hexagonale, $L = 3\sqrt{3}R$.

Lorsqu'on applique la formule précédente avec les dimensions approximatives précédentes, on obtient pour les modes guidés $\Delta E = 0.021\text{eV}$ et pour les modes de galerie $\Delta E = 0.238\text{eV}$ avec comme indice $n = 2.4$ qui est une valeur moyenne de l'indice du GaN autour de la longueur d'onde de 540nm (Yu et al., 1997b). Ces valeurs sont en accord avec les observations effectuées sur les spectres expérimentaux.

Les autres fils déposés sur la grille ont des dimensions similaires au fil précédemment étudié. On retrouve le même type de spectres que ceux de la figure 3.46 mais avec des valeurs de ΔE pour chacun des modes légèrement différentes, variant autour des valeurs théoriques.

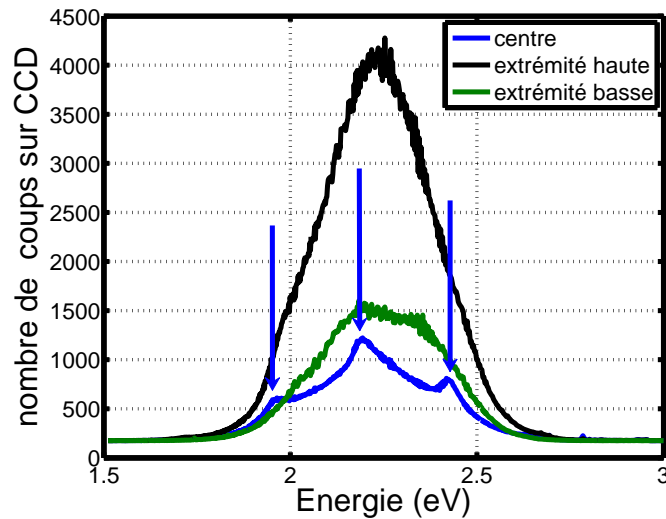


FIGURE 3.46 – Spectres de photoluminescence relevés à différentes positions pour une longueur d'onde d'excitation $\lambda = 407\text{nm}$. Le nanofil GaN MOCVD est couché sur une grille TEM. Le point de focalisation du laser est identique au point d'observation. Les flèches bleues pointent les résonances dues aux modes de galerie.

La finesse F des pics de résonance d'une cavité Fabry Pérot est reliée à la valeur des réflectivités aux extrémités de la cavité. En supposant que la réflectivité est la même de chaque côté du nanofil, la finesse est égale :

$$F = \pi \frac{r}{1 - r^2} \quad (3.29)$$

avec r le coefficient de réflexion en amplitude. La figure 3.47 présente un spectre obtenu en bout d'un fil pour lequel $\Delta E = 0.018\text{eV}$. La largeur d'un pic est en moyenne égale à 8meV , la finesse correspondante vaut donc 2.25 et la réflectivité $r = 0.52$. Cette valeur de r est à comparer avec la réflectivité vers l'air d'une onde plane en incidence normale qui est égale pour un milieu incident d'indice 2.4, à 0.41. La valeur expérimentale est donc supérieure à celle théorique, cette différence peut être due à la forme du bout du fil qui n'est pas rigoureusement plane comme montré sur les images MEB 3.44 et introduit un angle d'incidence non nul.

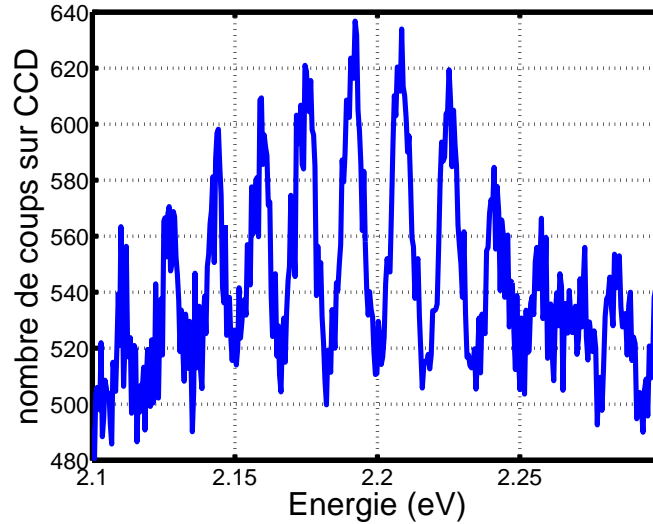


FIGURE 3.47 – Spectre de photoluminescence mesuré à l'extrémité d'un nanofil.

On peut donc conclure de ces observations que le modèle d'onde plane semble satisfaisant pour ces nanofils de diamètre supérieur à $1\mu m$.

Par ailleurs il a été vu dans la partie 3.7, que pour des fils de diamètres inférieurs à $150nm$, une compétition entre les modes du nanofil influençait l'émission spontanée du puits quantique. Pour observer cela expérimentalement il était nécessaire de choisir des fils de petit diamètre avec un puits quantique axial au centre et une longueur de nanofil supérieure à $10\mu m$ avant de pouvoir décorréler le spectre émis en bout de fil de celui émis au niveau de la source. Les fils de ZnO correspondent pratiquement à ces critères hormis la non-présence de puits quantiques et de la bande de défauts. Cette dernière ayant un spectre d'émission beaucoup plus large que le puits quantique est très utile pour observer les différents modes présents dans un nanofil. Des premiers résultats ont été obtenus à partir de l'émission du ZnO , un seul type de mode a pu être observé et l'intervalle spectral mesuré n'a pas pu être expliqué à ce jour.

3.7 Limites

Pour réaliser des LEDs brillantes, il est nécessaire d'avoir une surface émettrice la plus grande possible par rapport à la surface du substrat. On va ainsi chercher à rapprocher les nanofils les uns par rapport aux autres. Il est donc légitime de se demander dans quelle mesure l'approximation de nanofils isolés est valide.

Pour déterminer l'espacement minimum entre les fils, je me suis intéressée à la modification des propriétés des modes guidés lorsque l'on rapproche les fils. La majorité du raisonnement effectué dans cette partie a été présentée sur un poster lors de la conférence PECS VIII (Henneghien et al., 2009a).

Considérons un réseau périodique de nanofils à maille carré comme représenté sur le schéma 3.48. Dans cette thèse le pas du réseau sera toujours noté a . Il est courant dans l'étude des réseaux de raisonner en dimensions normalisées par a , par conséquent les résultats suivant sur les rayons des nanofils seront présentés sous la forme R/a . La valeur R/a maximum est logiquement égale à 0.5.

Dans la partie 3.2, nous avons vu les propriétés des champs électromagnétiques des modes guidés. Définissons l'extension du champ électrique à un pourcentage donné Γ telle que :

$$\Gamma = \frac{Puissance(r < extension)}{Puissance_{totale}} \quad (3.30)$$

$Puissance(r < extension)$ est la puissance contenue dans le cercle de rayon $extension$. En fixant Γ à 99%, l'extension correspondante pour chacun des modes guidés peut être estimée. En supposant que les nanofils peuvent être considérés comme isolés si seulement 1% de leurs champs électromagnétiques se superposent, il faudra alors espacer les nanofils d'un pas au moins égal à deux fois l'extension comme représenté sur la figure

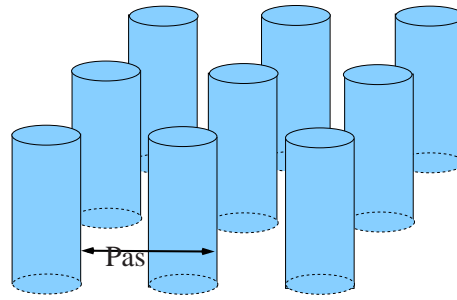


FIGURE 3.48 – Schéma d'un réseau de nanofil à maille carré.

3.49(a). Le résultat est présenté sur la figure 3.49(b) avec en ordonnées la valeur du rapport entre le rayon et deux fois l'extension. Pour un rayon donné, le rapport de R/a à choisir sera inférieur à la valeur minimum des différentes courbes du graphe.

Par exemple pour un rayon de $50nm$, il n'y a qu'une seule courbe car ce rayon est dans la zone monomode, le rapport R/a devra être supérieur à 0.1. Dans la zone multimode, pour un rayon de $100nm$, le rapport R/a maximum est égal à 0.21.

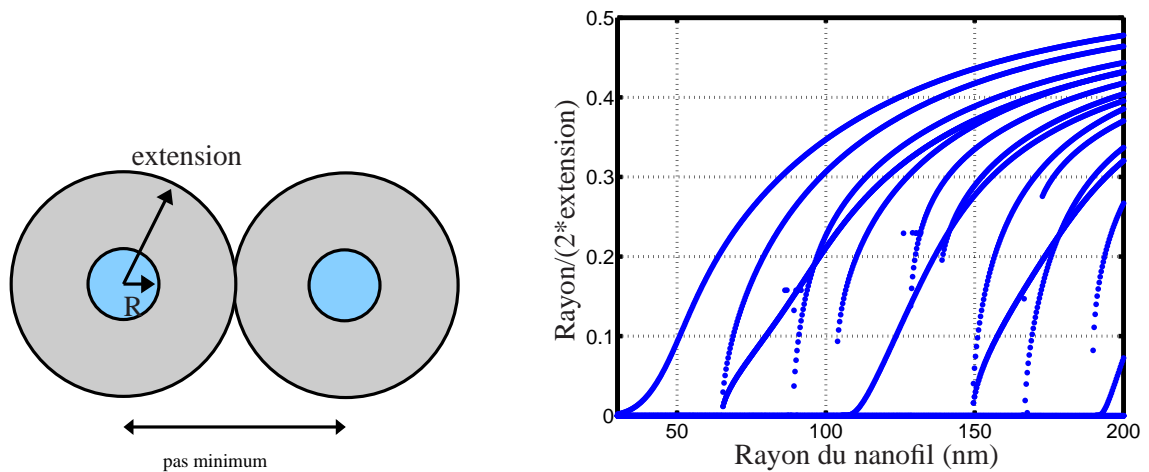


FIGURE 3.49 – Valeur minimum du rapport rayon/pas pour avoir des nanofils isolés du point de vue des modes guidés longitudinaux (longueur d'onde $380nm$). La valeur dépend des propriétés des modes guidés existants pour un rayon donné.

Afin de vérifier la validité de ce critère, les conséquences du rapprochement des fils entre eux, sur l'indice effectif des modes guidés doivent être observées. Un logiciel libre du MIT permet de réaliser ce calcul, c'est la mpb : MIT-photonic band (Johnson and Joannopoulos, 2001). Les indices effectifs des modes guidés le long du fil dans un réseau à maille carrée sont représentés sur la figure 3.50 pour les deux premiers modes seulement pour des raisons de visibilité. Reprenons la valeur de rayon de $50nm$ précédente, seul le rapport $R/a = 0.1$ permet d'avoir un indice effectif identique à celui du nanofil unique. Pour un rayon de $100nm$, d'après la figure 3.49, le rapport R/a minimum pour avoir les modes HE_{11} et TE_{01} isolés, vaut 0.3, on constate de même que pour les rapports R/a inférieurs à 0.3, les indices effectifs des modes sont semblables à ceux d'un nanofil unique. Le critère d'éloignement à 99% des champs semble donc être valide.

Par ailleurs la dilution des champs électromagnétiques dans le semiconducteur implique une augmentation de l'indice effectif du mode fondamental lorsque la distance entre les fils diminue. De plus le rayon de coupure du mode TE_{01} augmente avec le ratio R/a .

La modification de la réflectivité de ces deux modes a également été calculée. La technique utilisée est la RCWA (Rigorous Coupled Wave Analysis) qui est une méthode basée sur la résolution du problème dans une

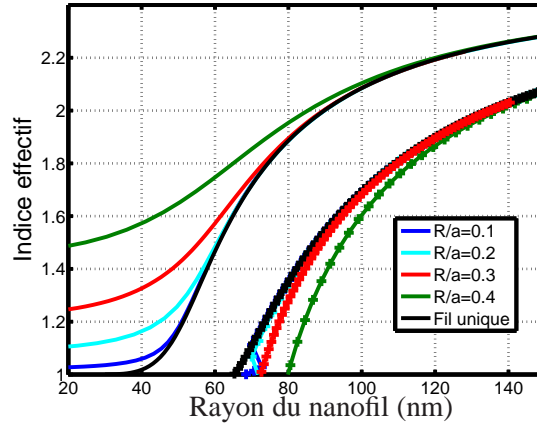


FIGURE 3.50 – Indice effectif (longueur d’onde $380nm$) des modes guidés dans un réseau carré. Le mode fondamental est en trait continu et le mode TE_{01} en trait continu avec des croix.

base de Fourier. Cette méthode sera expliquée dans le chapitre 5.

Le résultat est présenté sur la figure 3.51. Les temps de calcul par point étant très longs, seuls quelques points ont été estimés.

Quand le mode est déconfiné et que l’espacement entre les fils est faible, la réflectivité du fondamental est plus importante lorsque le fil est dans un réseau que lorsqu’il est isolé. Ce résultat est à relier à l’augmentation de l’indice effectif du mode lors de la dilution du champ dans les autres fils. Lorsque le mode est confiné, la réflectivité est similaire à celle d’un nanofil isolé.

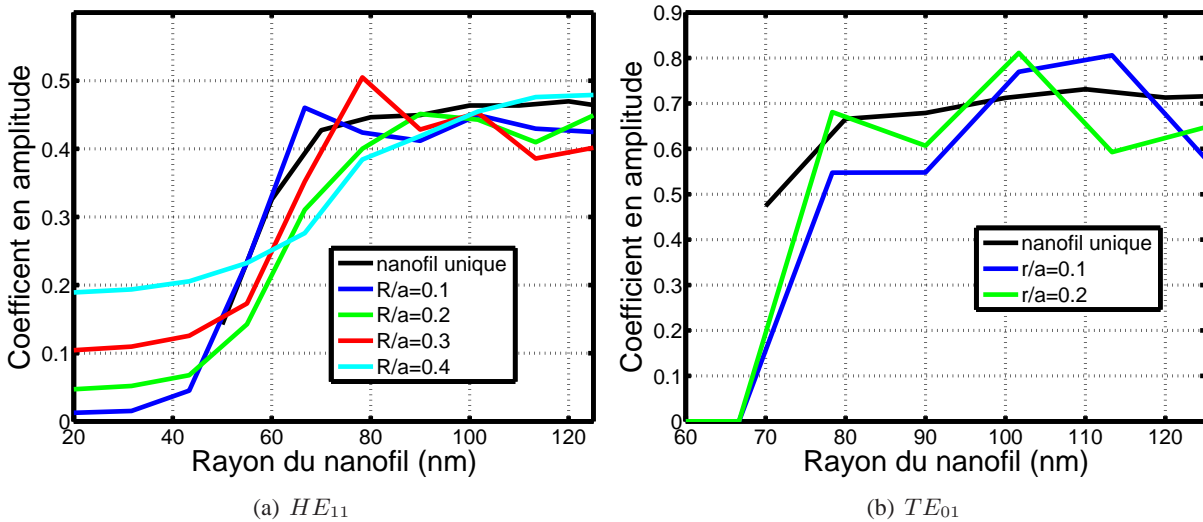


FIGURE 3.51 – Réflectivité en amplitude des modes HE_{11} et TE_{01} pour différentes valeurs de R/a .

Le critère d’extension des champs à 99% semble être valable pour définir l’espacement entre les nanofils nécessaire pour avoir un comportement de fil isolé du point de vue des modes guidés. Les modifications des propriétés des modes de galerie ainsi que de l’émission dipolaire sont beaucoup plus délicates à évaluer. Comme il sera vu dans le chapitre 5, cette étude a été en partie débutée par A. David (David et al., 2007a) dans le cadre de l’étude de nanopiliers de GaN .

3.8 Conclusion

Les propriétés des nanofils uniques ont été présentées dans ce chapitre. Le phénomène physique qui contrôle l'émission d'un nanofil unique est le couplage à deux types de modes, les modes guidés et les modes de galerie.

Les modes guidés sont intéressants pour l'extraction de lumière car ils conduisent, depuis le lieu d'émission, la lumière vers les extrémités du nanofil. Les rayons de fils étudiés étant inférieurs à la longueur d'onde, leurs propriétés ne peuvent pas être obtenues de manière simple et des calculs FDTD sont nécessaires pour estimer la réflectivité en bout de fil par exemple. Quelque soit le rayon, il y a toujours au moins un mode présent, le mode guidé fondamental.

Les modes de galerie sont des résonances dues à des interférences constructives de la lumière dans la section du fil contenant le puits quantique. Contrairement aux modes guidés, ils ne sont pas toujours présents dans la structure : seules certaines valeurs de rayons autorisent l'existence de tels modes. Ces modes ayant un faible facteur de qualité dans la gamme de rayons étudiée, la lumière couplée à ces modes est extraite de manière efficace sur les bords du nanofil directement depuis la zone d'émission.

Les dimensions réduites du nanofil vont également influencer théoriquement la durée de vie radiative des puits quantiques qui est par conséquent différente de celle dans une structure planaire. Dans le cas du puits radial, l'émission de la source peut être supérieure dans un nanofil. Dans toutes les structures le nombre de modes présents étant réduit, il y a compétition entre les modes : le taux de couplage sur les modes guidés peut fortement varier suivant les propriétés des modes de galerie.

En prenant en compte les différents résultats, des conclusions sur l'utilisation de telles structures pour la réalisation de LEDs à nanofils peuvent être énoncées :

- ▷ les LEDs axiales permettent d'utiliser la lumière guidée pour extraire le maximum de lumière à condition de choisir le rayon adéquat.
- ▷ les LEDs radiales favorisent l'émission de lumière sur les bords du nanofil. Les modes de galerie peuvent fortement renforcer l'émission à condition de choisir un rayon de résonance pour ces modes et de placer le puits quantique à une distance par rapport au centre égale à $0.9R$.

Une partie de ces différents résultats a été publiée dans un article ([Henneghien et al., 2009b](#)). Par ailleurs une comparaison de certains résultats entre un fil de section circulaire et hexagonale a conduit à la conclusion que dans le cadre de l'étude des LEDs, les deux structures étaient équivalentes (cf annexe A.2). En revanche aucune comparaison n'a été réalisée entre fil circulaire et un fil triangulaire. Ces derniers correspondent aux structures cœur-coquille réalisées par Lieber ([Qian et al., 2005](#)).

Dans le cadre de la thèse, les nanofils étudiés étaient entourés d'air ou de silice. La présence d'un métal autour des fils peuvent s'avérer nécessaire pour réaliser la prise de contact électrique. L'introduction d'une gaine métallique change les propriétés des modes guidés, des exemples de modification sont présentés dans l'annexe A.3.

Des vérifications expérimentales sur des nanofils ont été réalisées au cours de cette thèse sur des nanofils de GaN MOVCD avec ou sans puits quantique d' $InGaN$. Certaines propriétés de guidage des puits axiaux et radiaux ont pu être observées. Par ailleurs l'étude des spectres d'émission à différentes positions sur le nanofil, a permis de mettre en évidence la présence des modes guidés et des modes de galerie, ce qui n'avait jamais été encore observé simultanément dans la littérature. En revanche, aucune compétition entre les modes n'a pu être mise en évidence à ce jour.

Des observations qualitatives ont également été envisagées sur des micropiliers de $GaAs$ mais seuls des résultats numériques ont été obtenus à ce jour.

Pour une application dans les télécommunications, la directivité de la lumière en sortie de fil est un critère de performance important qui est directement relié aux modes guidés existants. Dans le cadre de l'éclairage à LED, la brillance et la taille du dispositif seront deux autres paramètres essentiels. Afin de concentrer la lumière, on cherchera donc à rapprocher les nanofils. Les limites du cadre d'étude des nanofils uniques ont été définies. La valeur de l'espace entre les fils dépend des modes guidés présents et donc du rayon des fils.

L'utilisation du guidage de la lumière dans les LEDs à nanofils isolés est une première approche du pro-

blème de l'extraction dans les ensembles de nanofils. Un autre concept consiste à rapprocher les fils entre eux afin d'augmenter la surface émettrice par unité de surface tout en profitant d'une diminution de l'indice effectif de la couche de nanofils par rapport aux structures planaires. Cette approche est détaillée dans le chapitre suivant.

ENSEMBLES DE NANOFILS DENSES ET DÉSORDONNÉS

Résumé.

Ce troisième chapitre porte sur l'étude des ensembles de petits nanofils denses. Ils correspondent aux LEDs à nanofils actuellement réalisées au CEA. Ces structures modélisables sous la forme de milieux effectifs permettent d'élargir le cône de lumière en abaissant l'indice moyen, ce qui est intéressant pour l'extraction. Des expériences de goniométrie réalisées sur des fils *GaN* MBE ont montré que la modélisation par un milieu isotrope était insuffisante et que l'introduction de l'anisotropie améliorait le modèle. Des calculs numériques ont ensuite permis d'estimer le rendement d'extraction de ces LEDs sur un substrat de silicium. Les résultats sont prometteurs pour la réalisation de LEDs efficaces et bas coût.

4.1 Introduction

Les LEDs à nanofils qui ont été réalisées au sein du projet Carnot "Éclairage", au cours de ma thèse utilisaient des nanofils obtenus par croissance MBE sur substrat de silicium tout comme Kishino (Kikuchi et al., 2006). Des nanofils ayant des dimensions similaires mais avec une zone dopée p en forme d'aiguille ont également été réalisés par (Kim et al., 2004). Comme il a été vu dans le premier chapitre, ces nanofils sont très petits par rapport à la longueur d'onde (rayon typique de 15nm pour les fils MBE) et ils ont un espace inter-fils également très faible. L'étude effectuée dans le chapitre précédent n'est pas applicable par conséquent.

Cette organisation de nanofils présente l'avantage pour l'extraction lumineuse d'abaisser l'indice moyen ce qui permet d'élargir le cône de lumière par rapport aux structures planaires de GaN . Les dimensions très sub-longueur d'onde peuvent laisser supposer qu'une modélisation sous la forme de couche d'indice effectif serait possible. Cette modélisation a déjà été réalisée par Chen (Chen et al., 2008) dans le cas de nanofils de GaN pour décrire une expérience de réflectivité en incidence normale et en longueur d'onde. Le premier objectif de ce travail est donc de reproduire et de compléter cette étude pour juger de la pertinence d'une modélisation de la couche de nanofils par un milieu effectif. Ensuite si le modèle se révèle fiable, le second objectif est de comprendre et d'estimer le rendement d'extraction de la lumière afin de déterminer l'organisation de nanofils la plus performante.

Afin de vérifier ce modèle, Gabriel Tourbot en thèse à l'INAC a réalisé des échantillons de nanofils pour confronter des résultats expérimentaux avec une modélisation sous la forme de milieu effectif. Ces échantillons seront décrits dans une première partie.

Les résultats des expériences de réflectivité en incidence normale et en longueur d'onde seront présentés dans un second temps. Des expériences de goniométrie complémentaires ont montré qu'un modèle de milieu effectif isotrope n'était pas suffisant et que l'introduction de l'anisotropie était nécessaire pour modéliser de manière plus satisfaisante la couche de nanofils.

Dans une troisième partie, le principe de la propagation de la lumière dans un milieu anisotrope sera expliqué pour ensuite être appliqué aux résultats expérimentaux afin de valider ce modèle. Une telle approche a déjà été réalisée par Gómez-Rivas dans (Gómez-Rivas et al., 2008) sur des nanofils de GaP . Ce matériau a un indice beaucoup plus grand que celui du GaN ($n = 3.3$). Cette différence justifie de reproduire cette étude expérimentale dans cette thèse, dans le cas du GaN .

A la vue des résultats précédents, l'extraction de la lumière de structures à base de nanofils denses sera évaluée dans une quatrième partie avant de conclure sur les différents résultats de ce chapitre.

4.2 Description des échantillons

Gabriel Tourbot étudiant en thèse au LETI/DOPT a réalisé à l'INAC un échantillon de nanofils ayant certaines caractéristiques géométriques permettant de vérifier le comportement de milieu effectif. Les conditions nécessaires à l'étude expérimentale sont : des fils le plus droit possible, pas de couche de fils coalescés à la base et une hauteur d'au moins $1\mu\text{m}$. Ces propriétés sont délicates à obtenir et nécessitent des températures et des temps de croissance très importants. Par ailleurs il est très difficile de fabriquer des échantillons ayant des facteurs de remplissage différents tout en conservant les caractéristiques précédentes. L'échantillon 1111 fut la référence expérimentale principale de mon travail sur ce sujet.

4.2.1 Échantillon 1111

En cours de croissance, le gradient de température au niveau du chauffage du substrat permet d'obtenir sur un même échantillon, différentes zones concentriques ayant des propriétés propres localement. Par exemple dans le cas de l'échantillon 1111, deux zones majeures sont présentes après l'épitaxie. Des images obtenues par MEB (microscopie électronique à balayage) des vues de dessus et de côté, sont présentées sur la figure 4.1.

On constate que :

- ▷ les fils sont approximativement droits,
- ▷ il n'y a pas de couche coalescée à la base pouvant gêner l'interprétation des résultats,
- ▷ sur une zone donnée, les fils ont tous approximativement la même hauteur,
- ▷ les diamètres des fils sont compris entre 30 et 100nm,
- ▷ les distances entre les fils les plus proches sont inférieures à 100nm.

Les dimensions de l'échantillon sont donc effectivement sub-longueur d'onde. La zone A (resp B) est constituée de nanofils de 1.4μm de hauteur environ (resp 2.1μm).

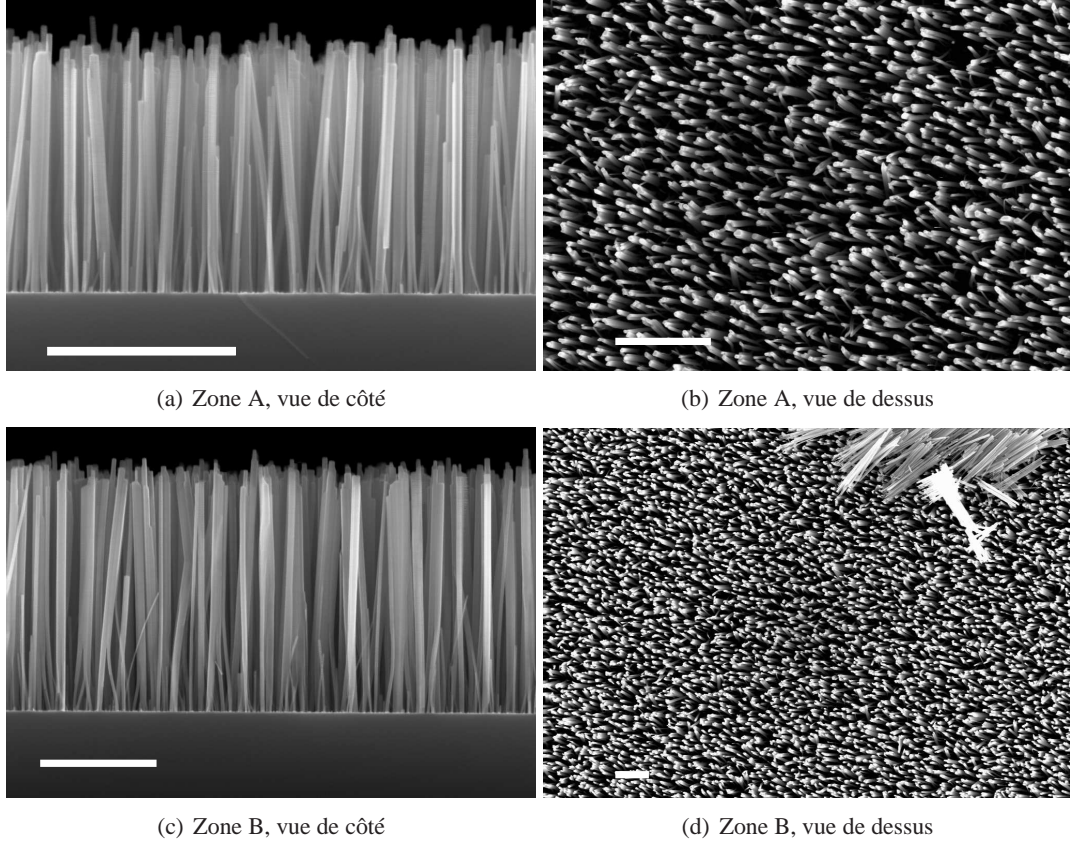


FIGURE 4.1 – Images MEB des deux zones de l'échantillon 1111, échelle 1μm. Le gradient de température sur le substrat durant la croissance permet d'avoir deux zones distinctes A et B.

Les facteurs de remplissage des deux zones ont tout d'abord été estimés par un calcul utilisant l'histogramme de l'image vue du dessus. J'ai ainsi mesuré un facteur de remplissage de 0.12 pour la zone A et 0.21 pour la zone B.

Dans le but de connaître la fluctuation du facteur de remplissage en profondeur, une mesure de réflectivité par rayons X sur la zone B a été réalisée dans un second temps. Cependant la couche étant peu dense et la surface supérieure étant rugueuse en raison de la différence de hauteur des fils, seule une mesure du facteur de remplissage global de la zone B a pu être estimée. La théorie de la mesure par réflectivité X est expliquée notamment dans l'ouvrage (Bowen and Tanner, 2006). L'expérience a été réalisée par Joël Eymery à l'INAC.

D'après les mesures présentées sur la figure 4.2, la couche de fils a un angle critique tel que :

$$2 \times \theta_c = 0.375^\circ \pm 0.04^\circ \quad (4.1)$$

D'après la théorie :

$$2 \times \theta_c = 3.2810^{-3} \lambda \sqrt{\rho} \quad (4.2)$$

avec ρ la densité massique ($6.10g/cm^3$ pour GaN et $2.33g/cm^3$ pour Si).

Pour le GaN massif,

$$2 \times \theta_c = 0.783^\circ \quad (4.3)$$

En faisant le rapport :

$$\rho_{\text{fils}} = \rho_{\text{GaN}}(0.375/0.783)^2 \quad (4.4)$$

$$\rho_{\text{fils}} = 0.2294 \times 6.10 = 1.34g/cm^3 \quad (4.5)$$

En densité cela correspond à un remplissage de $23\% \pm 5\%$, ce qui est bien en accord avec le calcul réalisé par histogramme.

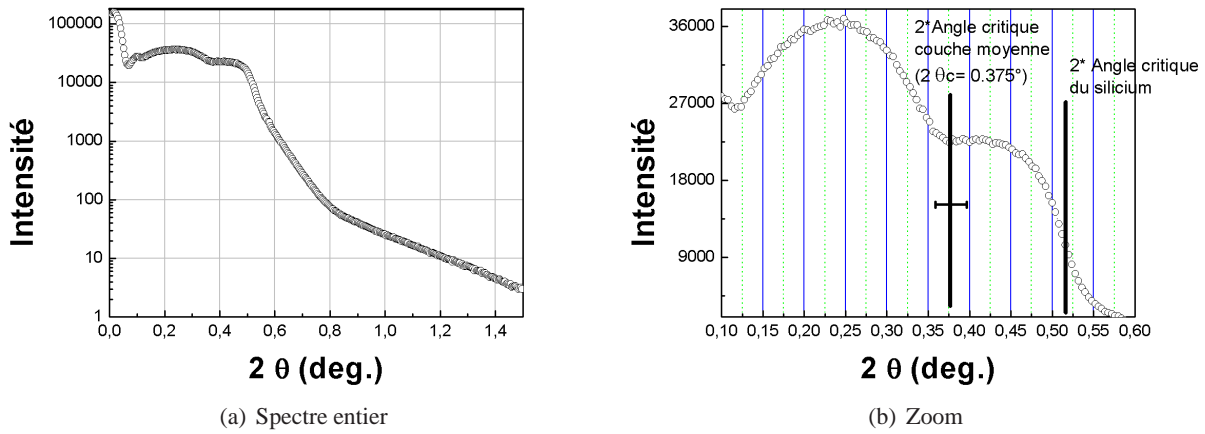


FIGURE 4.2 – Résultat de réflectivité X sur la zone B. Les oscillations permettent de remonter à la densité de nanofils.

4.2.2 Échantillon 1004

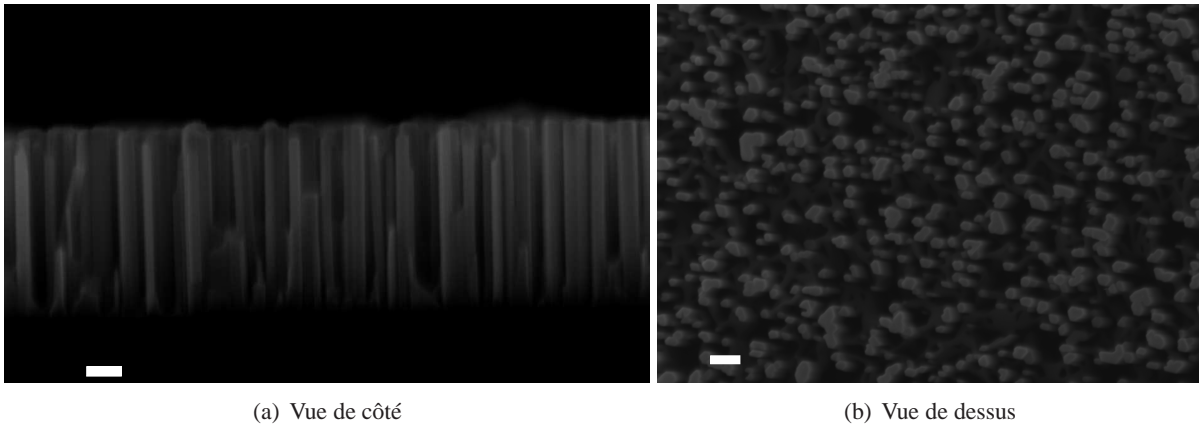


FIGURE 4.3 – Images MEB de l'échantillon 1004, échelle $100nm$.

Cet échantillon n'a pas été réalisé spécifiquement pour l'étude des couches denses de nanofils, par conséquent ses caractéristiques sont moins en accord avec le cadre de l'étude. En effet d'après les images MEB (fig. 4.3), cet échantillon comporte :

- ▷ des fils assez droits,
- ▷ des fils légèrement coalescés à la base,

- ▷ certains fils sont plus petits que la moyenne,
- ▷ les diamètres des fils d'environ $30nm$,
- ▷ les distances entre les fils les plus proches sont inférieures à $100nm$.
- ▷ la hauteur des fils est de $500nm$ environ.

La présence de la couche coalescée n'étant pas modélisée, les résultats de modélisation pourront être différents des valeurs expérimentales. Comme pour l'échantillon 1111, la densité de nanofils peut être estimée par histogramme à partir des images MEB. On trouve que la densité correspondante est égale à 16%. Cependant ces images MEB ne correspondent pas parfaitement à la zone qui sera étudiée par la suite. Or en raison du gradient de température, la densité et la hauteur des fils peuvent changer sur une même plaque. Par conséquent, ces valeurs seront considérées seulement comme un ordre de grandeur de comparaison avec les résultats expérimentaux qui seront déterminés dans la suite de ce chapitre.

Cet échantillon a été étudié expérimentalement uniquement en goniométrie comme il sera vu par la suite.

4.3 Premiers résultats expérimentaux

4.3.1 Modélisation isotrope

4.3.1.1 Les polarisations rectilignes

Considérons des ondes électromagnétiques planes et monochromatiques. Lorsqu'une onde se propage dans un milieu d'indice de réfraction n à la pulsation ω , le vecteur d'onde de cette onde plane est : $\vec{k} = n\omega/c\vec{u}$ avec \vec{u} un vecteur unitaire. Le vecteur de Poynting \vec{S} associé à cette onde est défini par : $\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H}$. Le vecteur \vec{S} est parallèle à \vec{k} . Il caractérise la trajectoire de l'énergie associée à l'onde.

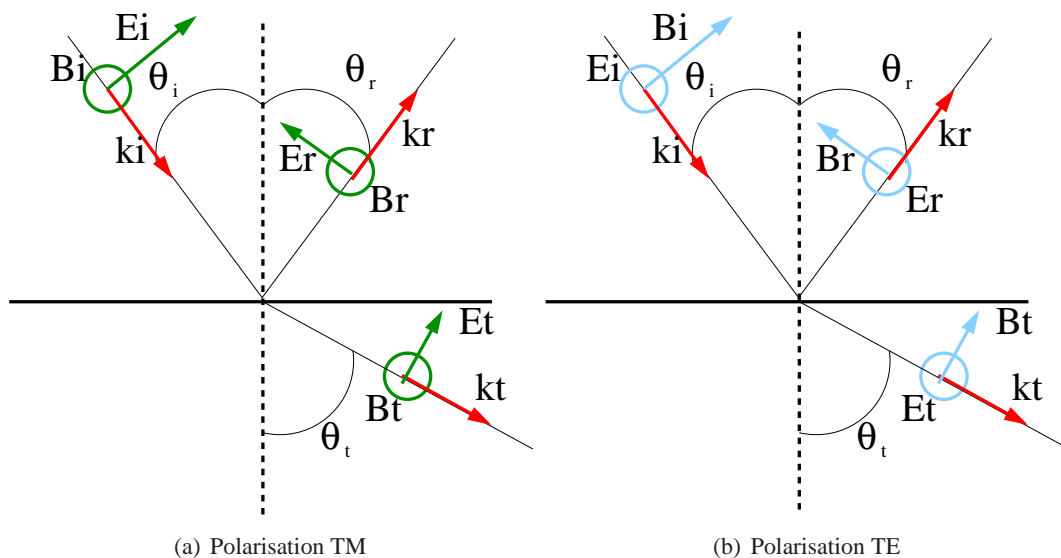


FIGURE 4.4 – Définition des polarisation rectilignes TM et TE en fonction de l'orientation des champs.

Dans le cas général, une onde plane monochromatique est polarisée elliptiquement et elle se décompose en deux ondes polarisées rectilignement dans des directions orthogonales. Une base classique des polarisations rectilignes est constituée de :

- ▷ la polarisation transverse magnétique (TM) également notée P : le champ magnétique est perpendiculaire au plan d'incidence comme représenté sur la figure 4.4(a),

▷ la polarisation transverse électrique (TE) également notée S : le champ électrique est perpendiculaire au plan d'incidence comme représenté sur la figure 4.4(b).

Le calcul des coefficients de réflexion d'une onde plane polarisée S ou P est un exercice classique d'électromagnétisme. Il est détaillé dans la suite de ce paragraphe car le raisonnement suivi sera réutilisé dans ce chapitre.

Cas polarisation TE

L'indice i caractérise ce qui se rapporte à l'onde incidente, r à l'onde réfléchie et t à l'onde transmise.

Les vecteurs d'onde dans un milieu donné, sont reliés à la longueur d'onde et à l'indice du milieu. Comme les rayons sont dans le plan d'incidence :

$$k_i = k_r = \frac{2\pi n_i}{\lambda_0} \quad (4.6)$$

$$k_t = \frac{2\pi n_t}{\lambda_0} \quad (4.7)$$

L'onde incidente est une onde plane monochromatique, ce qui permet d'avoir une relation simplifiée entre \mathbf{B} et \mathbf{E} . Par ailleurs d'après les équations de Maxwell, la composante tangentielle de \mathbf{B} est continue à l'interface entre deux milieux, d'où les équations suivantes :

$$\vec{B} = \frac{\vec{k} \wedge \vec{E}}{\omega} \quad (4.8)$$

$$-\frac{k_i E_i}{\omega} \cos \theta_i + \frac{k_r E_r}{\omega} \cos \theta_r = -\frac{k_t E_t}{\omega} \cos \theta_t \quad (4.9)$$

avec θ_n l'angle entre le vecteur d'onde k_n et la normale à l'interface.

Les équations de Maxwell permettent également de conclure que la composante tangentielle de \mathbf{E} est continue, or comme le champ \mathbf{E} est tangentiel :

$$E_i + E_r = E_t \quad (4.10)$$

De plus, d'après les lois de Descartes $\theta_i = \theta_r$. Des équations précédentes, on déduit le système suivant :

$$n_i \cos \theta_i (1 - r) = n_t \cos \theta_t t \quad (4.11)$$

$$(1 + r) = t \quad (4.12)$$

avec $r = E_r/E_i$ et $t = E_t/E_i$, d'où :

$$r = \frac{n_i \cos \theta_i - n_t \cos \theta_t}{n_i \cos \theta_i + n_t \cos \theta_t} \quad (4.13)$$

$$t = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_i \cos \theta_i + n_t \cos \theta_t} \quad (4.14)$$

Cas polarisation TM

De la même manière, la continuité de \mathbf{B} qui est tangentiel conduit à :

$$-\frac{k_i E_i}{\omega} + \frac{k_r E_r}{\omega} = -\frac{k_t E_t}{\omega} \quad (4.15)$$

et la continuité de la composante tangentielle de \mathbf{E} :

$$\cos \theta_i E_i + \cos \theta_r E_r = \cos \theta_t E_t \quad (4.16)$$

On obtient ainsi le système :

$$n_i(1 + r) = n_t t \quad (4.17)$$

$$\cos \theta_i(1 - r) = \cos \theta_t t \quad (4.18)$$

d'où :

$$r = \frac{n_t \cos \theta_i - n_i \cos \theta_t}{n_t \cos \theta_i + n_i \cos \theta_t} \quad (4.19)$$

$$t = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_t \cos \theta_i + n_i \cos \theta_t} \quad (4.20)$$

4.3.1.2 Les modèles d'indice effectif

La théorie des milieux poreux est un domaine vaste de la physique. Aspnes dans (Aspnes, 1982) réalise un inventaire des différentes techniques permettant de relier la réponse diélectrique macroscopique à la micro-structure de la couche. Suivant la forme des objets et leur densité, la permittivité effective sera différente. Citons les trois théories classiques : Bruggeman, Maxwell-Garnett et Bergman.

La théorie des milieux effectifs est valide dans un certain domaine de longueurs d'onde dépendant des dimensions des objets. Il faut se placer dans l'approximation quasi-statique également appelée régime des grandes longueurs d'onde ou régime des longueurs d'onde infinies : la taille des objets est dans ce cas typiquement inférieure à 0.1λ .

Soit f le facteur de remplissage d'un matériau, cette valeur correspond à la fraction de volume de l'élément dans le milieu étudié. En reprenant les notations de (Aspnes, 1982), soit ϵ_a et ϵ_b les permittivités respectives des matériaux a et b constituant le milieu et ϵ la permittivité effective.

Chen dans (Chen et al., 2008), utilise ainsi l'approximation de Bruggeman pour modéliser des couches de nanofils GaN de facteur de remplissage de 50% environ. En effet l'expression de Bruggeman, également connue sous le terme d' "approximation du milieu effectif" (EMA) caractérise les milieux pour lesquels f_a et f_b sont comparables, alors ϵ vérifie :

$$0 = f_a \frac{\epsilon_a - \epsilon}{\epsilon_a + 2\epsilon} + f_b \frac{\epsilon_b - \epsilon}{\epsilon_b + 2\epsilon} \quad (4.21)$$

Cependant comme le souligne Aspnes, ce modèle est valide pour objets sphériques et non cylindriques.

Au contraire, lorsqu'un des matériaux est dilué par exemple le matériau b , c'est l'expression de Maxwell Garnett qui est valide pour des objets sphériques :

$$\frac{\epsilon - \epsilon_a}{\epsilon + 2\epsilon_a} = f_b \frac{\epsilon_b - \epsilon_a}{\epsilon_b + 2\epsilon_a} \quad (4.22)$$

Il existe par ailleurs une version de cette expression pour des objets cylindriques :

$$\epsilon = \epsilon_a \left(1 + \frac{2f_b\alpha}{1 - f_b\alpha} \right) \quad (4.23)$$

où $\alpha = (\epsilon_b - \epsilon_a)/(\epsilon_b + \epsilon_a)$ est le facteur de dépolarisation. Cette expression sera justifiée dans la partie 4.4.

4.3.2 Réflectivité en incidence normale et en longueur d'onde

J'ai cherché tout d'abord à reproduire l'expérience de réflectivité en incidence normale et en longueur d'onde de l'article (Chen et al., 2008).

4.3.2.1 Description

Le micro-photomètre du laboratoire a permis de réaliser des mesures de réflectivité en longueur d'onde en quasi incidence normale.

Le schéma de principe de l'appareil est présenté sur la figure 4.5. L'illumination de l'échantillon est assurée par un éclairage de Köhler permettant de couvrir la gamme de longueurs d'onde du visible. La taille du spot sur l'échantillon fait approximativement $20\mu m$ de diamètre. Une fibre optique de $100\mu m$ de diamètre permet d'envoyer l'image à un spectrographe qui contient un réseau de 300 traits par mm , et à une caméra CCD refroidie pour l'acquisition du spectre. La résolution en longueur d'onde est de $1nm$ et le diamètre du spot est de $5\mu m$ avec un objectif ayant un grossissement de 20.

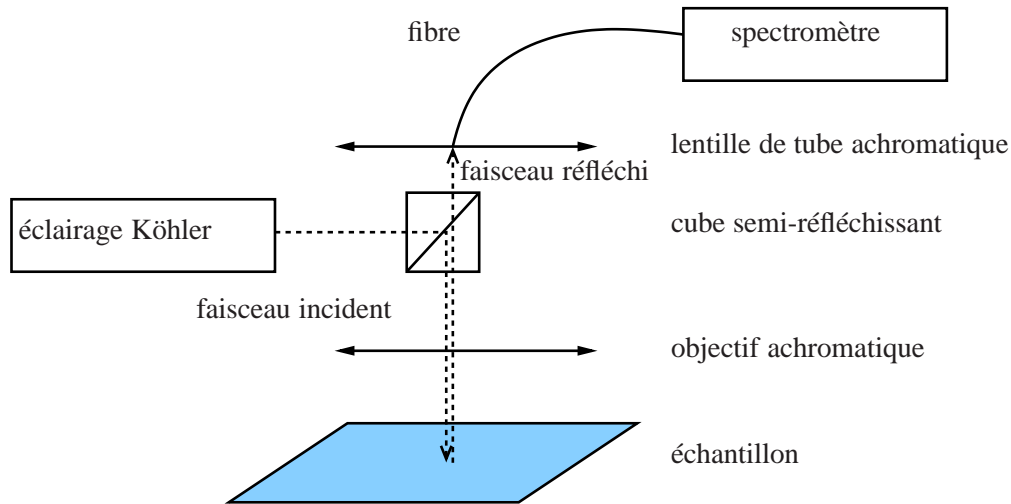


FIGURE 4.5 – Expérience de micro-photométrie en incidence normale.

Le protocole expérimental comprend une phase d'initialisation de la mesure à l'aide d'un échantillon de référence. Les échantillons étudiés comportant un substrat de silicium, c'est une couche de silicium massive qui a servi de référence. Toutes les mesures réalisées sont ensuite normalisées par le résultat référence. En raison de la faible réflectivité de la couche en dessous de 450nm , les valeurs expérimentales en dessous de cette longueur d'onde ne seront pas prises en compte car elles comportent une erreur de mesure trop importante.

4.3.2.2 Résultats

L'échantillon 1111 a été étudié à différents endroits afin de sonder des zones de facteurs de remplissage et de hauteurs différents. Les figures 4.6 et 4.7 présentent les résultats de deux positions pour chacune des zones A et B.

Les spectres de réflectivité mesurés comportent des franges qui semblent dépendre de l'épaisseur de la couche de nanofils et de leur densité. Ces interférences sont dues à des résonances Fabry-Pérot au sein de la cavité formée par l'interface air/nanofils et silicium/nanofils.

Le facteur de remplissage est de 10% pour la zone A et de 21% pour la zone B, par conséquent il faut utiliser l'expression de l'indice effectif de Maxwell Garnett donnée par l'équation 4.23. Par ailleurs cet indice effectif est utilisé à la fois pour calculer les coefficients de réflexion et les termes de phase contrairement à Chen qui utilise l'indice du *GaN* pour calculer la réflectivité et l'indice effectif pour la phase (cette approche ne m'a pas paru rigoureuse). La base d'indice du *GaN* utilisée pour calculer l'indice effectif est celle fournie par (Yu et al., 1997b). Par ailleurs, l'indice du silicium a été pris dans (Palik, 1998).

En modélisant la réflectivité d'une telle structure, il est possible de déterminer les valeurs de l'épaisseur ainsi que celles de l'indice de la couche de nanofils et donc du facteur de remplissage correspondant aux spectres expérimentaux. Les valeurs sont obtenues grâce à une méthode de régression non linéaire de minimisation des moindres carrés sur les résultats expérimentaux. Les résultats sont tracés en noir sur les figures 4.6 et 4.7 et les valeurs sont résumées dans la table 4.1.

Les facteurs de remplissage sont cohérents avec les valeurs obtenues à partir des images MEB. En revanche, les épaisseurs sont supérieures à celles attendues. Cependant d'après la table 4.1, l'échantillon ne semble pas très homogène en épaisseur : il y a un écart de 90nm entre les deux positions de la zone A.

Tout comme dans l'article de Chen, l'introduction d'une absorption s'est avérée nécessaire pour faire correspondre les courbes expérimentales et simulées. Cette absorption peut être due à la diffusion de la lumière

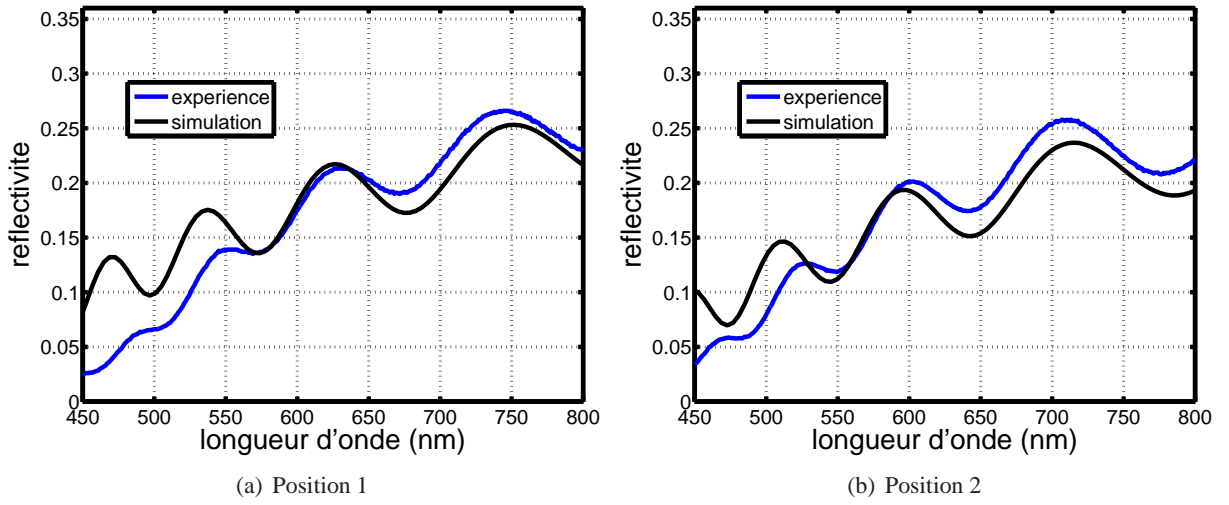


FIGURE 4.6 – Spectres de réflectivité en longueur d'onde en incidence normale pour la zone A. La courbe simulée a été calculée en utilisant le modèle d'indice de l'équation 4.23. Les positions 1 et 2 sont distantes de $\sim 5mm$. La position des maxima des courbes simulées correspond à celles des courbes expérimentales.

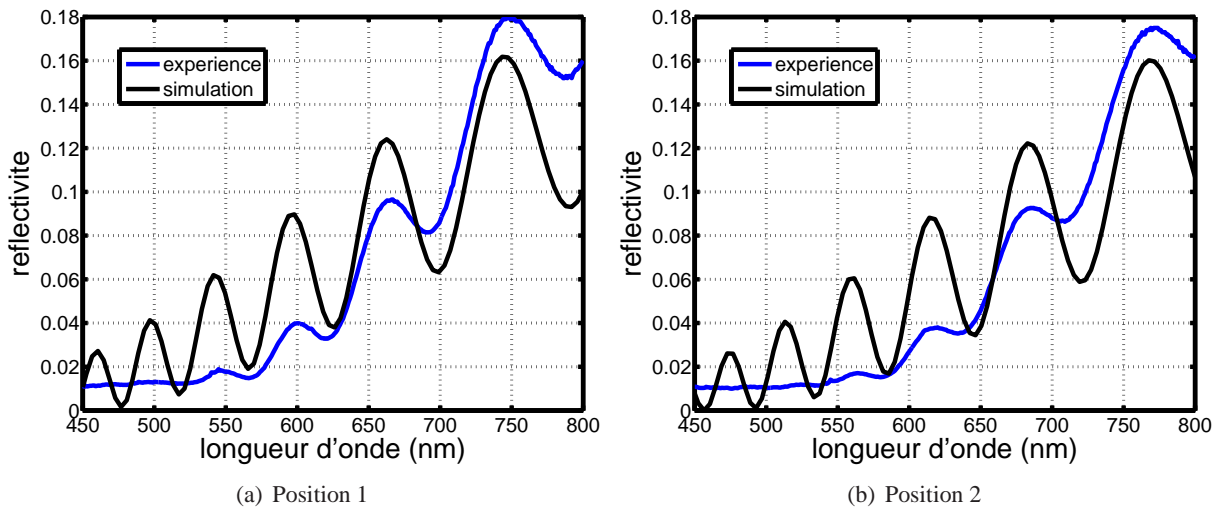


FIGURE 4.7 – Spectres de réflectivité en longueur d'onde en incidence normale pour la zone B. La courbe simulée a été calculée en utilisant le modèle d'indice de l'équation 4.23. Les positions 1 et 2 sont distantes de $\sim 5mm$. La position des maxima des courbes simulées correspond à celles des courbes expérimentales. Pour les longueurs d'onde inférieures à $550nm$, les oscillations du spectre expérimental sont fortement amorties contrairement à celles simulées.

	position 1	position 2	valeurs estimées à partir des images MEB
Zone A	$h = 1635nm$ $f = 0.12$	$h = 1635nm$ $f = 0.13$	$1400nm$ $f = 0.13$
Zone B	$h = 2600nm$ $f = 0.2$	$h = 2665nm$ $f = 0.21$	$2100nm$ $f = 0.21$

TABLE 4.1 – Paramètres obtenus à partir des courbes expérimentales.

dans la couche de nanofils ou à la surface. Cette diffusion dépend de la longueur d'onde. D'après van de Hulst dans (van de Hulst, 1981), lorsque l'objet diffractant est de forme cylindrique, la dépendance de k est proportionnelle à λ^{-2} . Dans le cas de la zone A, $k = 3000/\lambda^2$ et pour la zone B, $k = 5500/\lambda^2$. Ces valeurs sont de l'ordre de grandeur de celles de Chen.

Les maxima et minima expérimentaux et simulés correspondent en angle sur les différentes courbes. En revanche pour les courtes longueurs d'onde, l'amplitude des courbes simulées est bien plus grande que celle mesurée. Le modèle d'absorption en λ^{-2} ne semble pas être suffisant pour décrire la structure.

4.3.3 Expérience de goniométrie

L'objectif final associé à l'étude des couches de nanofils est de réaliser des LEDs émettant autour de $450nm$. Par conséquent après avoir étudié le comportement de telles structures en incidence normale et en longueur d'onde, j'ai cherché à compléter l'étude des couches à travers d'autres expériences à une longueur d'onde plus proche de celle d'émission. Des expériences de goniométrie ont ainsi été réalisées.

4.3.3.1 Description

La goniométrie consiste à mesurer les valeurs de réflectivité et de transmission d'un faisceau incident sur un échantillon, en fonction de l'angle. Dans le cadre de ma thèse, le faisceau incident était polarisé suivant l'état de polarisation rectiligne S ou P.

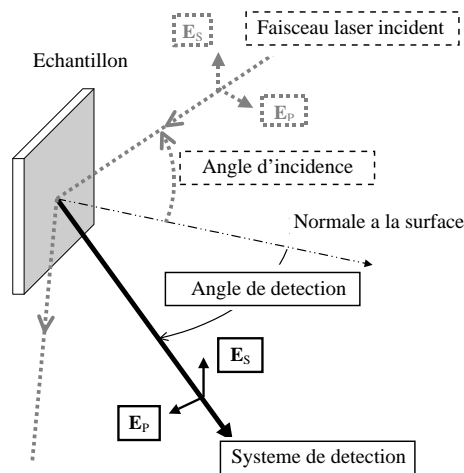


FIGURE 4.8 – Expérience de goniométrie polarisée. Les lignes pointillées sont associées au faisceau incident ; les traits continus au faisceau réfléchi. **Es**, **Ep** sont les directions du vecteur champ électrique pour la polarisation S et P respectivement. Le système de détection comprend : une sphère intégrante + une photodiode + une connexion à un ordinateur.

Le dispositif est décrit sur le schéma 4.8. Le faisceau laser incident polarisé linéairement est concentré sur l'échantillon après la traversée d'un filtre spatial à miroir achromatique permettant d'épurer le faisceau. Le spot ainsi obtenu a un diamètre de l'ordre de $1mm$.

L'échantillon est placé sur un support rotatif permettant de faire varier l'angle d'incidence θ entre 5° et 85° . Il faut s'assurer au départ que l'échantillon, et plus précisément la zone de mesure, est positionnée sur l'axe de rotation, pour cela il faut mettre l'échantillon en incidence rasante. Afin de mesurer la réflexion spéculaire, il est

nécessaire de positionner le dispositif de détection du faisceau réfléchi à un angle de 2θ par rapport au faisceau incident. Cela est effectué à l'aide d'un second système de rotation autour du même axe que le précédent.

Le dispositif de détection est composé d'une sphère intégrante avec une photodiode silicium, il est situé à une distance de 55cm de l'échantillon ce qui permet d'obtenir une précision angulaire de l'ordre du centième de pour cent.

Un programme sous labview permet de contrôler l'angle et la polarisation d'incidence ainsi que la position du faisceau sur l'échantillon et l'appareillage de détection. Enfin deux détections synchrones ont été mises en place pour diminuer le bruit de mesure : la première sur la mesure de la réflectivité ou de la transmission, la seconde sur la référence. A chaque point, deux mesures sont effectuées successivement, la première pour la réflectivité et la seconde pour la référence, le résultat final étant le rapport de ces deux mesures, cela permet de s'affranchir des fluctuations lentes du laser dans le temps. Cependant les fluctuations rapides du laser dans le temps limitent la précision photométrique à un ordre de 10^{-3} pour le laser argon.

Différents modes de mesures sont réalisables :

- ▷ détection "point à point" : dans ce cas, un spectre angulaire est effectué en un seul point pour les deux polarisations. Pour un angle donné, plusieurs mesures sont enregistrées afin d'évaluer un bruit de mesure (écart type).
- ▷ détection "à la volée" : c'est le même type d'expérience que précédemment, à la différence près que une seule mesure par angle est effectuée, ce qui a l'avantage d'être plus rapide mais moins précis que la technique précédente.
- ▷ détection "cartographie" : une détection "à la volée" est alors réalisée en différents points de l'échantillon.

Les échantillons de couches de nanofils de GaN réalisés par MBE sont systématiquement sur un substrat de silicium. Par conséquent, la transmission n'est pas mesurable en raison de la forte absorption dans le silicium.

Pour mesurer la diffusion il faudrait pour un angle d'incidence donné, observer la réflexion sur tous les angles et non seulement sur le spéculaire à 2θ . Le pilotage informatique actuel du banc de mesure ne permet pas de mesurer la diffusion qui de plus est un signal faible par rapport à la réflexion spéculaire. La diffusion sera une mesure intéressante pour évaluer l'impact de la rugosification de la surface sur l'absorption de la couche.

Des mesures ont été faites à une longueur d'onde de 488nm qui est obtenue à partir d'un laser argon. Cette valeur a été choisie car elle est supérieure au gap du GaN de manière à étudier la couche de fils sans exciter le matériau, tout en étant assez proche de $\lambda = 450\text{nm}$ qui est la longueur d'onde d'émission des puits quantiques d' $InGaN$. L'hypothèse de couche de permittivité effective est également valide pour toutes les longueurs d'onde supérieures à 450nm car elles sont très supérieures aux dimensions caractéristiques de la couche (diamètre et espace inter-fils).

Peu après les premières séries de mesures, différents problèmes techniques sont survenus : le laser à gaz est en premier tombé en panne, et peu après la détection synchrone. Un second laser a été mis en place et la détection synchrone fut remplacée. Malheureusement, le nouveau laser à gaz s'est arrêté pour ne plus redémarrer. Le nombre de mesures fut donc très restreint car le second laser n'est à ce jour toujours pas remplacé. Je n'ai ainsi pu comparer le modèle qu'avec un nombre limité d'échantillons.

4.3.3.2 Interprétation des résultats

Le modèle utilisé dans ce paragraphe pour représenter la couche de nanofils est un milieu homogène isotrope. Le but est de constater les limites de cette modélisation.

Échantillon 1111

Le résultat expérimental de goniométrie réalisée sur la zone A à 488nm est présenté sur la figure 4.9.

Un programme de minimisation de l'erreur permet de calculer les valeurs de l'épaisseur de la couche h et de l'indice complexe (n et k) correspondant à la structure. Les incertitudes expérimentales sont prises en compte dans le calcul. La technique utilisée est une méthode non linéaire de minimisation des moindres carrés (fonction `lsqnonlin` dans Matlab). Avant de réaliser le calcul, il faut déterminer des valeurs limites aux paramètres recherchés ainsi qu'un point de départ. Les valeurs de départ peuvent fortement influencer le résultat, c'est pourquoi il est important de les faire varier pour vérifier la robustesse du résultat. Les courbes à analyser peuvent être soit celle correspondant à la polarisation S, soit à la polarisation P, soit aux deux polarisations simultanément.

Lorsqu'on analyse les deux polarisations séparément, les valeurs obtenues pour h , n et k ne correspondent absolument pas. C'est par exemple le cas pour l'étude de la zone A.

Lorsqu'on analyse les deux polarisations simultanément, le résultat n'est pas satisfaisant notamment pour la polarisation P ainsi que pour sa dérivée par rapport à θ . Il est représenté sur la figure 4.9(a). On peut ainsi constater que la courbe simulée est très différente de la courbe expérimentale.

	S	P	S et P
hauteur	1369nm	1295nm	1346nm
n	1.057	1.097	1.064
k	0.033	0.030	0.033

TABLE 4.2 – Paramètres obtenus à partir des courbes expérimentales à l'aide d'un programme de minimisation de l'erreur. Les valeurs obtenues sont très différentes suivant le choix de fit entre S ou P ou (S et P).

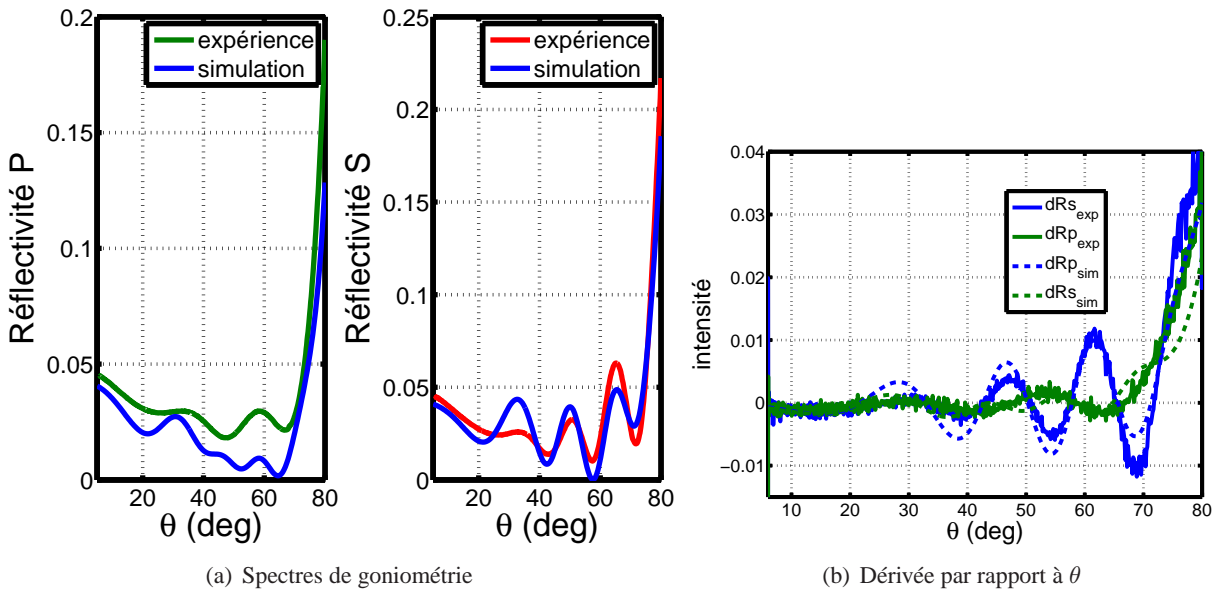


FIGURE 4.9 – Résultats expérimentaux et simulés avec un modèle isotrope de la zone A à $\lambda = 488nm$. La courbe simulée de la polarisation P ne correspond ni en amplitude ni en dérivée à la courbe expérimentale.

Échantillon 1004

La figure 4.10 représente les résultats de simulation sur les polarisations S et P. Tout comme pour l'échantillon 1111, les courbes numériques ne sont pas en concordance avec celles expérimentales. Les valeurs des paramètres estimés sont les suivants : hauteur de la couche 350nm, indice $1.285 + i0.06$.

En conclusion, ce modèle donne une satisfaction limitée. Une étude bibliographique sur la modélisation de telles couches dans d'autres matériaux comme le silicium (Yang et al., 2008) et le GaP (Muskens et al., 2006), m'a amené à l'introduction de l'anisotropie dont le modèle pouvait conduire à une description plus

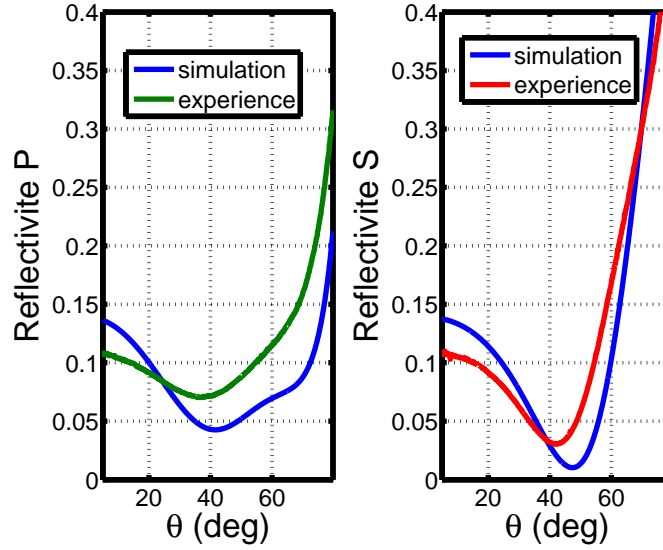


FIGURE 4.10 – Résultats de goniométrie expérimentaux et simulés avec un modèle isotrope de l'échantillon 1004 à $\lambda = 488nm$. La différence entre les courbes est importante quelque soit la valeur de l'angle d'incidence.

satisfaisante de la structure. L'orientation des fils laisse en effet supposer que la lumière suivant l'axe des fils, ne se comportera pas de la même manière que dans le plan perpendiculaire à cet axe.

4.4 Introduction de l'anisotropie

Avant de reprendre les résultats expérimentaux de la partie 4.3 afin de les comparer avec ce nouveau modèle anisotrope, le calcul numérique tenant compte de l'anisotropie de la structure doit être établi. Les ouvrages de Huart (Huart, 1994) et de Yeh (Yeh, 1988) définissent le concept de l'anisotropie en général à partir duquel il est ensuite possible d'effectuer des calculs de réflectivité et de transmission de manière graphique ou matricielle.

4.4.1 Nouveau calcul des lois de transmission et réflexion en milieu anisotrope

4.4.1.1 Généralités

Les milieux seront supposés dans toute cette étude comme non magnétiques et donc de perméabilité magnétique μ_0 .

Un milieu diélectrique anisotrope est un milieu dont les propriétés optiques dépendent de la direction de propagation de l'onde électromagnétique. Pour une direction de polarisation fixée, il y a deux indices de réfraction possibles, chacun étant associé à un état de polarisation particulier appelé état propre. Deux types d'anisotropies sont possibles :

- ▷ anisotropie linéaire : les états propres sont les états de polarisation rectilignes,
- ▷ anisotropie circulaire : les états propres sont les états de polarisation circulaires.

Dans le cas de l'étude des nanofils, les axes de croissances étant tous parallèles les uns par rapport aux autres, l'anisotropie est du type linéaire. Les cristaux liquides bien connus dans le domaine des écrans qui portent le même nom, sont également des matériaux à anisotropie linéaire.

Rappelons tout d'abord le lien entre le tenseur diélectrique \mathbf{D} et le champ électrique \mathbf{E} :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \epsilon \vec{E} \quad (4.24)$$

où ϵ est le tenseur permittivité relative. A partir des équations de Maxwell, on montre que dans le cas d'anisotropie linéaire, ϵ est symétrique. En choisissant un repère adéquat, ϵ peut être écrit sous la forme d'un tenseur diagonal :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{pmatrix} \quad (4.25)$$

Rappelons les équations de Maxwell qui sont la base de tout développement électromagnétique. Dans le cas de la propagation d'une onde plane monochromatique :

$$\vec{k} \times \vec{E} = \omega \mu_0 \vec{H} \quad (4.26)$$

$$\vec{k} \cdot \vec{H} = 0 \quad (4.27)$$

$$\vec{k} \times \vec{H} = -\omega \vec{D} \quad (4.28)$$

$$\vec{k} \cdot \vec{D} = 0 \quad (4.29)$$

La relation entre \mathbf{D} et \mathbf{E} est obtenue à partir des équations précédentes :

$$\vec{D} = \frac{k^2}{\omega^2 \mu_0} [\vec{E} - (\vec{u} \cdot \vec{E}) \vec{u}] \quad (4.30)$$

où $\vec{k} = k \vec{u}$. Ainsi \vec{u} est la direction de propagation. Dans le cas général, d'après la relation 4.24, \mathbf{D} n'est plus parallèle à \mathbf{E} . Par conséquent $\vec{u} \cdot \vec{E}$ n'est pas nul : le champ électrique n'est plus transverse contrairement aux milieux isotropes. En revanche \mathbf{D} et \mathbf{H} (et \mathbf{B}) sont transverses d'après les équations de Maxwell 4.27 et 4.29, et \mathbf{E} est perpendiculaire à \mathbf{H} (équation 4.26). On en déduit la distribution de champs présentée sur la figure 4.11.

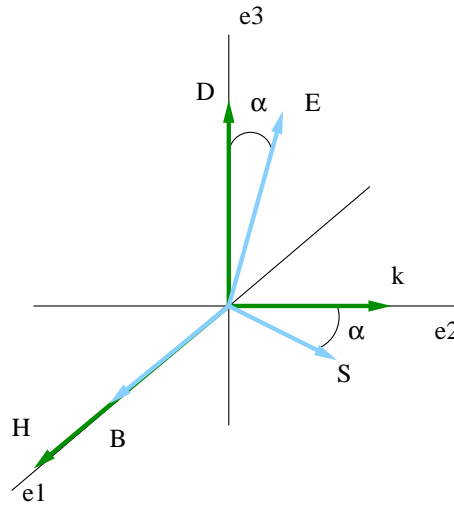


FIGURE 4.11 – Distribution des champs électromagnétiques dans un milieu anisotrope. Le champ électrique n'est plus parallèle au vecteur déplacement électrique, de même pour le vecteur de Poynting \mathbf{S} vis à vis du vecteur d'onde \mathbf{k} . Les vecteurs \mathbf{k} , \mathbf{D} et \mathbf{H} forment un trièdre direct.

De la même manière, le vecteur de Poynting \mathbf{S} n'est plus parallèle à \mathbf{k} .

De cette différence fondamentale avec les milieux isotropes découle un nouveau calcul des coefficients de réflexion et transmission.

A l'aide des relations 4.25 et 4.30, on obtient le système suivant :

$$\begin{bmatrix} \epsilon_x k_0^2 - (1 - \alpha^2) k^2 & \alpha \beta k^2 & \alpha \gamma k^2 \\ \alpha \beta k^2 & \epsilon_y k_0^2 - (1 - \beta^2) k^2 & \beta \gamma k^2 \\ \alpha \gamma k^2 & \beta \gamma k^2 & \epsilon_z k_0^2 - (1 - \gamma^2) k^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (4.31)$$

avec (α, β, γ) les composantes de u . Introduisons n tel que $k = nk_0$. Pour que ce système ait une solution autre que $E = 0$, il faut que son déterminant soit nul, c'est l'équation de Fresnel :

$$\frac{\alpha^2}{n^2 - \epsilon_x} + \frac{\beta^2}{n^2 - \epsilon_y} + \frac{\gamma^2}{n^2 - \epsilon_z} = \frac{1}{n^2} \quad (4.32)$$

On montre qu'il existe deux solutions suivant la direction de propagation u , n_1 et n_2 , et deux solutions suivant $-u$. A chaque n correspond un vecteur \mathbf{D} .

En traçant les valeurs de n_1 et n_2 dans le repère (e_x, e_y, e_z) , on obtient les surfaces d'indices qui sont présentées sur la figure 4.12.

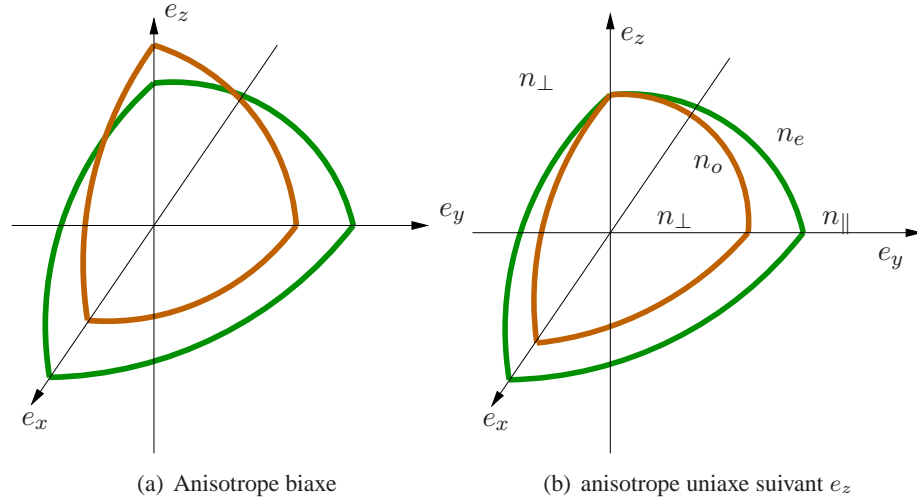


FIGURE 4.12 – Surface d'indices dans la zone $X > 0$, $Y > 0$ et $Z > 0$ dans le cas d'un matériau anisotrope biaxe à gauche et uniaxe à droite. Dans ce dernier cas, l'axe optique du matériau est e_z : les valeurs de n_e et n_o sont égales suivant e_z et différentes dans les autres directions.

4.4.1.2 Cas des milieux uniaxes

Les milieux anisotropes uniaxes sont un cas particulier d'anisotropie et dans ce cas $\epsilon_x = \epsilon_y = \epsilon_\perp$, elle est appelée permittivité ordinaire. Par opposition $\epsilon_z = \epsilon_\parallel$ est appelée permittivité extraordinaire. Nommons $n_1 = n_o$ et $n_2 = n_e$. En résolvant l'équation de Fresnel, on obtient deux surfaces d'indice particulières, la première surface d'indice est une sphère de rayon $n_o = \sqrt{\epsilon_\perp} = n_\perp$ et la deuxième surface est un ellipsoïde de révolution autour de l'axe z dont l'ellipse méridienne a pour demi-axes n_o et $\sqrt{\epsilon_\parallel} = n_\parallel$. Les deux surfaces sont représentés sur la figure 4.12(b).

Ainsi pour la polarisation ordinaire, l'indice ne dépend pas de la direction de propagation. Pour la polarisation extraordinaire, dans tout plan contenant l'axe z , l'indice extraordinaire vérifie :

$$\frac{1}{n_e^2} = \frac{\cos^2 \theta}{n_\perp^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_\parallel^2} \quad (4.33)$$

avec θ , l'angle par rapport à z . z est donc l'axe suivant lequel les indices n_o et n_e sont égaux : c'est l'axe optique du milieu anisotrope uniaxe.

La notion de biréfringence Δn est définie par :

$$\Delta n = |n_\perp - n_\parallel| \quad (4.34)$$

On parle de biréfringence positive si $n_\perp < n_\parallel$ et négative dans le cas contraire.

Définissons maintenant les états propres associés à n_o et n_e . Il existe deux états propres rectilignes \mathbf{D}_o et \mathbf{D}_e . D'après (Yeh, 1988) ces états sont orthogonaux et la direction de \mathbf{D}_e est donnée par la projection de l'axe optique sur le plan d'onde.

Dans le cadre de l'étude de couches de nanofils denses, certaines propriétés de cette couche permettent de calculer plus facilement les nouveaux coefficients de réflectivité pour chacune des polarisations dans le milieu anisotrope. En effet les nanofils sont perpendiculaires au substrat et donc à l'interface entre la couche de fils et les autres couches, ce qui revient à considérer que l'axe optique z est confondu avec la normale à la surface des couches de nanofils.

Serge Huart dans son livre (Huart, 1994) décrit comment construire graphiquement dans le plan d'incidence, les directions des différents vecteurs électromagnétiques pour chacune des polarisations dans le cas général d'anisotropie uniaxe. La construction repose sur la conservation de la partie tangentielle du vecteur d'onde \mathbf{k} lors de la traversée de l'interface.

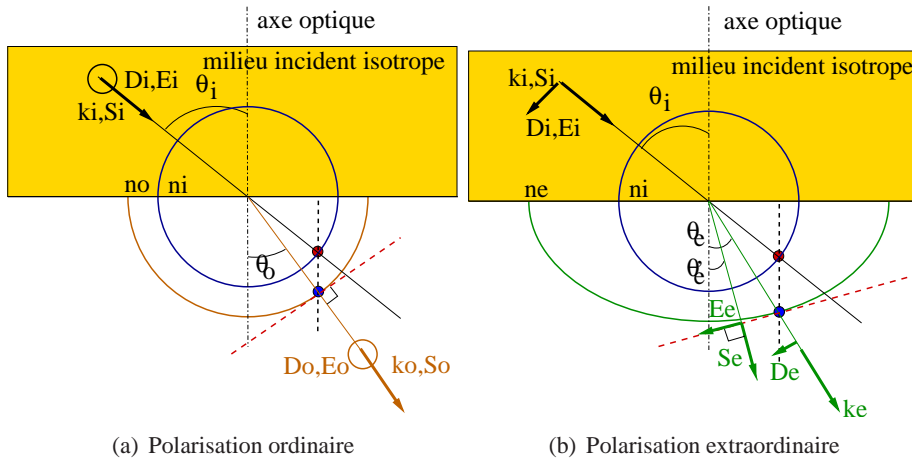


FIGURE 4.13 – Construction graphique des champs électromagnétiques lors de la transmission d'une onde lumineuse d'un milieu incident isotrope vers un milieu anisotrope. Le diagramme repose sur la conservation de la composante parallèle du vecteur d'onde. La polarisation ordinaire (resp. extraordinaire) est identique à la polarisation TE (resp. TM). Dans le cas de la polarisation extraordinaire, le vecteur de Poynting n'est pas colinéaire au vecteur d'onde.

Ces principes de construction vont maintenant être appliqués au cas particulier décrit précédemment pour ensuite en déduire les coefficients de réflectivité et transmission.

Dans le cas de la polarisation ordinaire, il faut tout d'abord représenter les surfaces d'indice dans le plan d'incidence. La conservation de $k_{||}$ implique :

$$n_i \sin \theta_i = n_o(\theta_o) \sin \theta_i = n_o \sin \theta_i \quad (4.35)$$

avec les angles θ_i et θ_o définis sur la figure 4.13(a). La droite représentant la direction de l'onde incidente coupe le cercle d'indice n_i au point rouge. La droite perpendiculaire à l'interface et passant par ce point rouge, coupe également le cercle d'indice n_o en un point bleu. La droite passant par le centre et ce point bleu permet de connaître la direction de \mathbf{k}_o et l'angle θ_o . Dans le cas de la polarisation extraordinaire, en suivant le même raisonnement à partir de l'ellipse d'indice n_e , on obtient la direction de \mathbf{k}_e , l'angle θ_e et l'indice vu par l'onde $n_e(\theta_e)$ (figure 4.13(b)).

A partir de cette situation, on obtient très rapidement \mathbf{D}_e qui d'après la définition précédente, se trouve dans le plan d'incidence et perpendiculaire au vecteur \mathbf{k}_e et on en déduit la direction de \mathbf{D}_o qui est orthogonal à \mathbf{k}_o et à \mathbf{D}_e .

A l'aide de l'équation 4.30, on montre que le vecteur \mathbf{E} est dans le plan tangent à la surface d'indice au point coïncidant avec la direction de propagation de \mathbf{k} . En appliquant cette propriété aux schémas de la figure 4.13, on en déduit que :

- ▷ pour la polarisation ordinaire, le champ électrique est colinéaire au champ \mathbf{D}_o et que par conséquent le vecteur de Poynting est parallèle au vecteur d'onde
- ▷ pour la polarisation extraordinaire, le champ électrique n'est pas colinéaire à \mathbf{D}_e mais il est perpendiculaire au vecteur de Poynting ayant un angle θ'_e par rapport à l'axe optique.

Par conséquent dans ce cas particulier d'anisotropie uniaxe, on constate sur la figure 4.13 que la polarisation ordinaire est en fait une polarisation transverse électrique (TE) car le champ électrique est dans un plan perpendiculaire au plan d'incidence. De même, la polarisation extraordinaire est une polarisation transverse magnétique (TM) car le champ magnétique est perpendiculaire au plan d'incidence.

En appliquant le même raisonnement que dans la partie 4.3.1 :

Polarisation ordinaire

Dans ce cas, les coefficients de réflexion et transmission sont obtenus en appliquant les formules 4.13 et 4.14 avec $n_t = n_o$.

Polarisation extraordinaire

\mathbf{E}_e n'étant plus colinéaire à \mathbf{D}_e , un nouveau calcul des coefficients de réflectivité est nécessaire en suivant un raisonnement similaire à celui utilisé pour la polarisation TM.

La continuité de \mathbf{B} qui est tangentiel conduit à :

$$-\frac{k_i E_i}{\omega} + \frac{k_r E_r}{\omega} = -\frac{k_e E_e}{\omega} \quad (4.36)$$

La continuité de la composante tangentielle de \mathbf{E} s'écrit :

$$\cos \theta_i E_i + \cos \theta_r E_r = \cos \theta'_e E_e \quad (4.37)$$

Des équations précédentes, on en déduit le système :

$$n_i(1 + r) = n_e(\theta_e)t \quad (4.38)$$

$$(1 - r) \cos \theta_i = t \cos \theta'_e \quad (4.39)$$

Par ailleurs, $n_e(\theta_e)$ est obtenu à partir de l'équation 4.33 et des lois de Descartes. On peut ainsi lier n_e à l'angle d'incidence uniquement :

$$n_e^2(\theta_i) = n_\perp^2 + \frac{n_\parallel^2 - n_\perp^2}{n_\parallel^2} n_i^2 \sin^2 \theta_i \quad (4.40)$$

θ'_e est défini en utilisant l'équation de la courbe d'indice et l'équation de la tangente à cette courbe, on montre que :

$$\tan \theta'_e = \frac{n_\perp n_i \sin \theta_i}{n_\parallel^2 \sqrt{1 - n_i^2/n_\parallel^2 \sin^2 \theta_i}} \quad (4.41)$$

Au final, avec les résultats précédents, les nouveaux coefficients de réflectivité et de transmission en amplitude sont :

$$r = \frac{n_e(\theta_i) \cos \theta_i - n_i \cos \theta'_e}{n_e(\theta_i) \cos \theta_i + n_i \cos \theta'_e} \quad (4.42)$$

$$t = \frac{2n_i \cos \theta_i}{n_e(\theta_i) \cos \theta_i + n_i \cos \theta'_e} \quad (4.43)$$

Pour vérifier les calculs, des simulations FDTD ont permis de comparer les coefficients de réflexion et de transmission pour différents milieux anisotropes et différents angles d'incidence ; les résultats des simulations étaient bien en accord.

La figure 4.14 compare le résultat de réflectivité sur une interface entre un milieu isotrope et un milieu anisotrope ou deux milieux isotropes. Si l'on conserve pour n_{\perp} l'indice du milieu isotrope alors il n'y a pas de différence au niveau de la polarisation TE, en revanche dès que l'on introduit une anisotropie avec $n_{\parallel} \neq n_{\perp}$ le coefficient de la polarisation TM est modifié. En incidence normale, la réflectivité est la même pour les deux polarisations : l'ellipse d'indice en $\theta_i = \theta_o = \theta_e = 0$ vaut n_{\perp} .

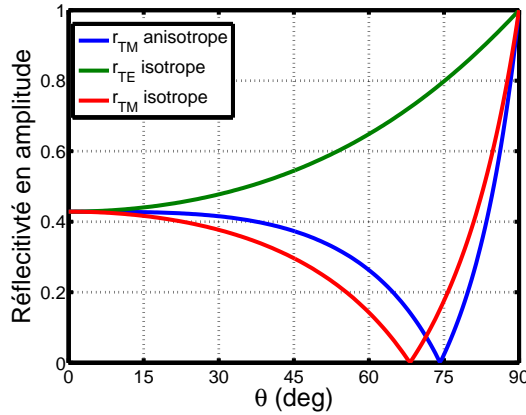


FIGURE 4.14 – Coefficient de réflectivité entre deux milieux semi-infinis en fonction de l'angle d'incidence. Le milieu incident est l'air et le milieu de transmission a un indice $n = 2.5$ dans le cas isotrope et $n_{\perp} = 2.5$ et $n_{\parallel} = 1.5$ dans le cas anisotrope. La réflectivité TM est différente entre un milieu isotrope et anisotrope.

Lorsque la structure complète comporte plusieurs sous-couches telle que celle présentée sur la figure 4.15, il est indispensable de travailler avec un formalisme matriciel traduisant la propagation (matrice P) et la transmission et réflexion à une interface (matrice M).

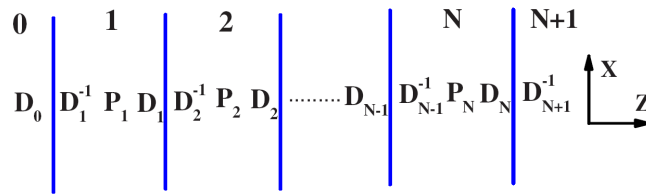


FIGURE 4.15 – Formalisme dans le cas d'une structure multicouche comportant $N + 1$ couches.

Afin d'alléger les équations, on pose $M_{n+1,n} = D_{n+1}^{-1} D_n$.

Une relation entre les champs incidents, réfléchis et transmis est ainsi établie :

$$\begin{pmatrix} E_s^t \\ 0 \\ E_p^t \\ 0 \end{pmatrix} = Q \begin{pmatrix} E_s^i \\ E_s^r \\ E_p^i \\ E_p^r \end{pmatrix} \quad (4.44)$$

avec :

$$Q = M_{N+1,N} P_N M_{N,N-1} P_{N-1} \cdots M_{2,1} P_1 M_{1,0} P_0 \quad (4.45)$$

Les coefficients de réflexion et transmission peuvent être calculés à partir de Q :

$$r_s = \frac{Q_{24}Q_{41} - Q_{21}Q_{44}}{Q_{22}Q_{44} - Q_{24}Q_{42}} \quad (4.46)$$

$$r_p = \frac{Q_{23}Q_{42} - Q_{22}Q_{43}}{Q_{22}Q_{44} - Q_{24}Q_{42}} \quad (4.47)$$

La détermination des termes de $M_{N,N-1}$ et de P_N est possible grâce à l'étude précédente. P_N correspond à la propagation dans la couche N . Pour la polarisation TM, il faut prendre en compte l'indice $n_e(\theta_e)$ et la direction du vecteur d'onde. D'où la matrice diagonale :

$$P_N = \begin{bmatrix} e^{-id_N \cos \theta_{o,N} n_{o,N} k_0} & & & \\ & e^{id_N \cos \theta_{o,N} n_{o,N} k_0} & & \\ & & e^{-id_N \cos \theta_{e,N} n_{e,N} k_0} & \\ & & & e^{-id_N \cos \theta_{e,N} n_{e,N} k_0} \end{bmatrix} \quad (4.48)$$

L'écriture de $M_{N,N-1}$ est plus compliquée car elle fait intervenir également θ'_e :

$$M_{N,N-1} = 1/2 \begin{bmatrix} A & B & 0 & 0 \\ B & A & 0 & 0 \\ 0 & 0 & C & D \\ 0 & 0 & D & C \end{bmatrix} \quad (4.49)$$

avec :

$$A = 1 + \cos \theta_{o,N-1} / \cos \theta_{o,N} \quad (4.50)$$

$$B = 1 - \cos \theta_{o,N-1} / \cos \theta_{o,N} \quad (4.51)$$

$$C = n_{e,N-1} / n_{e,N} + \cos \theta'_{e,N-1} / \cos \theta'_{e,N} \quad (4.52)$$

$$D = n_{e,N-1} / n_{e,N} - \cos \theta'_{e,N-1} / \cos \theta'_{e,N} \quad (4.53)$$

Le calcul final a également été vérifié par FDTD.

4.4.2 Choix de la modélisation des indices anisotropes des fils

Dans le paragraphe sur les propriétés isotropes des couches, deux modèles d'indice effectif ont été introduits correspondant chacun à une certaine répartition f des matériaux.

Dans la modélisation de l'anisotropie uniaxe, deux valeurs de permittivité distinctes doivent être prises en compte pour un même facteur de remplissage : ϵ_{\perp} et ϵ_{\parallel} . Par conséquent deux questions doivent être posées :

- ▷ Les modèles de Bruggeman et de Maxwell Garnett décrit dans les équations 4.21 et 4.23 peuvent-ils être utilisés pour décrire l'anisotropie due à des couches de nanofils ?
- ▷ Comment attribuer les modèles d'indice effectif aux deux permittivités ?

Tout d'abord comme il a été souligné précédemment, Aspnes dans (Aspnes, 1982) précise que les deux modèles précédents ne sont valides que pour des structures de symétrie sphérique, ils ne peuvent donc pas être utilisés pour modéliser les ensembles denses de fils.

De nombreux articles sur la modélisation de l'anisotropie dans des ensembles désordonnés sont présents dans la littérature. Dans le cas de l'étude d'objets de forme cylindrique, Busch et Soukoulis ont fait de nombreux calculs (Busch and Soukoulis, 1996; Kirchner et al., 1998) dans le régime des grandes longueurs d'onde. Ces objets sont de plus désordonnés. En effectuant de longs calculs numériques, ils obtiennent que dans le cas de cylindres :

$$\epsilon_{\parallel} = f\epsilon_{co} + (1 - f)\epsilon_{cl} \quad (4.54)$$

avec ϵ_{co} l'indice du nanofil et ϵ_{cl} l'indice de la gaine. Des équations identiques sont obtenues dans (Silveirinha, 2006) dans le cas d'un réseau périodique.

Cette définition s'explique par des considérations sur le champ électrique. Lorsque le champ \mathbf{E} de l'onde propagatrice est parallèle à chacune des interfaces des nanofils, cela revient à avoir le champ électrique avec des composantes tangentielles uniquement. Par conséquent le champ électrique est uniforme dans la couche de nanofils et la permittivité associée à la structure est une moyenne des permittivités.

Kirshner démontre également que :

$$\epsilon_{\perp} = \epsilon_{cl} \left(1 + \frac{2f\alpha}{1 - f\alpha} \right) \quad (4.55)$$

où $\alpha = (\epsilon_{co} - \epsilon_{cl})/(\epsilon_{co} + \epsilon_{cl})$ est le facteur de dépolarisation et f le facteur de remplissage. C'est l'approximation de Maxwell-Garnett appliquée aux cylindres. Cette expression a déjà été utilisée dans la partie 4.3.1. En incidence normale, les permittivités ordinaire et extraordinaire sont égales et valent ϵ_{\perp} . Les résultats de modélisation de la réflectivité en incidence normale sont donc toujours valides dans le cas anisotrope, ce qui n'est pas le cas des résultats de goniométrie.

L'approximation de Maxwell-Garnett est valide pour des structures où un des deux matériaux est plus dilué que l'autre. Les résultats obtenus avec ce modèle anisotrope, dans la suite de ce chapitre, pourront être légèrement différents dans la réalité lorsque le facteur de remplissage sera supérieur à 30 voir 40%. Les LEDs à nanofils fabriquées par épitaxie MBE dans le cadre du projet Carnot Eclairage ont un facteur de remplissage de l'ordre de 10 à 15%.

Ce modèle d'indice a également été choisi par Gómez Rivas dans son étude de la biréfringence de couches de nanofils de GaP (Gómez-Rivas et al., 2008). Il existe d'autres approches dans la littérature pour calculer les permittivités effectives notamment dans le domaine des métamatériaux. Cependant les études concernent le plus souvent des structures organisées périodiquement.

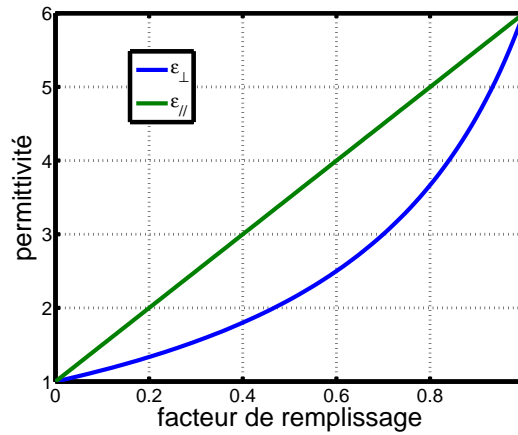


FIGURE 4.16 – Permittivités perpendiculaire et parallèle en fonction du facteur de remplissage des nanofils. Les fils sont entourés d'air et leur indice est égal à 2.45.

Les permittivités calculées par ces modèles sont représentées sur la figure 4.16. La permittivité extraordinaire évolue linéairement avec le facteur de remplissage. La permittivité ordinaire est toujours inférieure à la permittivité extraordinaire, la couche de nanofils pourraient donc être semblable à un matériau biréfringent positif si le modèle est validé.

L'anisotropie intrinsèque du matériau GaN a été mesurée par Yu et al. dans (Yu et al., 1997a). À la longueur d'onde de $450nm$, en utilisant les lois de Sellmeier de l'article, on obtient $n_{\parallel}^i = 2.485$ et $n_{\perp}^i = 2.469$, ($n_{GaN} = 2.477$), ce qui conduit à une biréfringence inférieure à 0.02. La biréfringence de la couche est tracée sur la figure 4.17. Elle est très largement supérieure à la biréfringence intrinsèque. Par conséquent, dans la suite de ce travail, la biréfringence intrinsèque sera négligée.

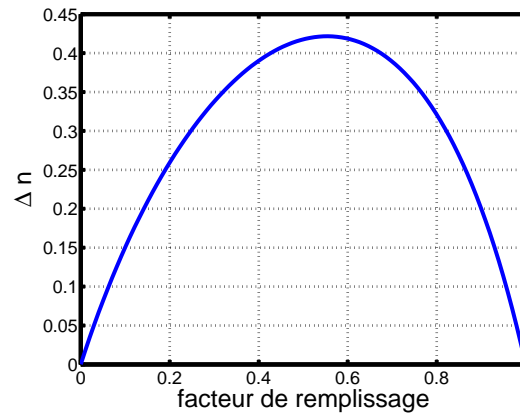


FIGURE 4.17 – Biréfringence d'une couche de nanofils entourés d'air en fonction du facteur de remplissage.

Afin de valider ce modèle numériquement, la réflectivité d'une onde plane sur une couche de nanofils calculée avec ces modèles d'indice, a été comparée avec la réflectivité d'une couche de nanofils organisés de même facteur de remplissage, calculée avec la RCWA (Rigorous Coupled Wave Analysis). Cette méthode reposant sur une résolution du problème dans l'espace de Fourier, sera décrite dans le chapitre suivant. La structure simulée est décrite sur la figure 4.18(a). C'est un réseau carré de nanofils organisé de section circulaire avec un diamètre de 20nm et un pas de 56nm , la distance interfils est de 36nm . Les dimensions sont donc sub-longueurs d'onde, ce qui est en accord avec les hypothèses précédentes. Le facteur de remplissage correspondant à la structure est égal à 0.1.

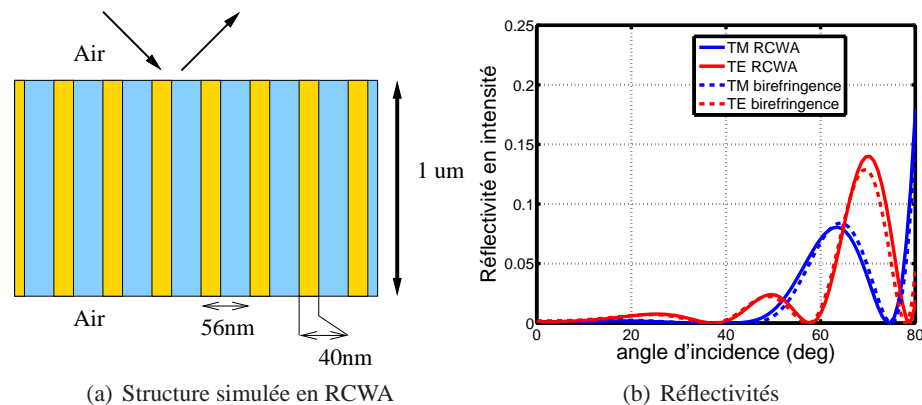


FIGURE 4.18 – Comparaison de la réflectivité d'une onde plane sur une couche de nanofils calculée par la méthode RCWA et la méthode d'indice effectif anisotrope. Les propriétés des nanofils sont résumées sur la figure de gauche. La valeur de la réflectivité est similaire entre les deux méthodes.

La convergence nécessite un nombre d'ordre de Fourier de plus en plus grand au fur et à mesure que l'angle d'incidence croît. Par conséquent le temps de simulation de la structure est très largement supérieur pour la RCWA (quelques minutes) par rapport au calcul avec le modèle anisotrope qui est quasiment instantané.

4.4.3 Études expérimentales

Reprenons maintenant les résultats expérimentaux présentés dans la partie 4.3.3. Précédemment, la modélisation de l'ensemble de nanofils denses par un milieu effectif isotrope ne donnait pas des courbes de réflectivité en angle en accord avec celles expérimentales. Dans cette partie la couche de nanofils est cette fois modélisée par un milieu d'indice effectif anisotrope, le but étant de vérifier la pertinence du modèle anisotrope.

D'autres courbes expérimentales vont également être présentées notamment pour la zone B de l'échantillon 1111 afin d'apporter d'autres éléments de comparaison entre la théorie et l'expérience.

4.4.3.1 Échantillon 1111

Zone A

La figure 4.19 présente différentes courbes de réflectivités en polarisation S et P pour la zone A issues d'une cartographie de goniométrie. Il est important de remarquer que l'inhomogénéité de la couche déjà observée sur les courbes de réflectivité en longueur d'onde, est également visible dans les expériences de goniométrie. En effet des variations de la position des maxima et de leur intensité est visible sur la figure.

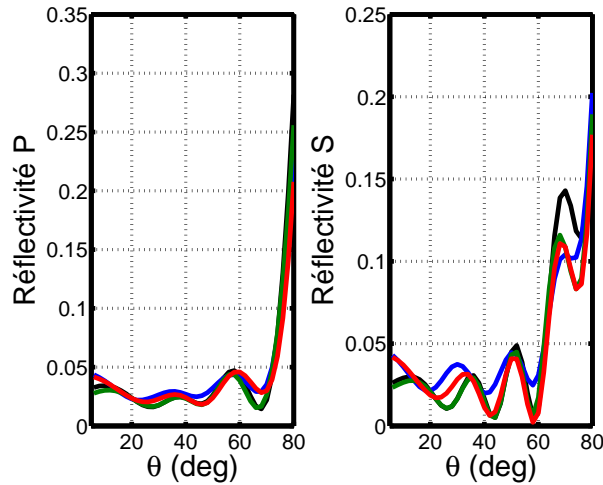


FIGURE 4.19 – Réflectivités de quatre points différents de la zone A à la longueur d'onde 488nm . Les points sont espacés de 5mm . L'inhomogénéité de l'échantillon provoque des fluctuations de la courbe de réflectivité en angle.

Tout comme pour la modélisation isotrope, les trois paramètres ϵ_{\perp} , ϵ_{\parallel} et la hauteur sont déterminés simultanément à partir des résultats expérimentaux de réflectivité suivant les polarisations S et P. Afin de donner un sens physique à la minimisation, il est important que les résultats numériques correspondent aux résultats expérimentaux aussi bien au niveau de l'amplitude mais également pour la position angulaire des maxima et des minima. Par conséquent le programme de minimisation permet d'obtenir les paramètres dont les courbes correspondent le mieux à la fois aux courbes des réflectivités et à leurs dérivées par rapport à l'angle d'incidence.

Un paramètre ajustable est le poids des dérivées par rapport aux réflectivités. Un poids important favorisera la position des extrema alors qu'un poids faible permettra d'avoir des courbes de réflectivité simulées très proches de celles expérimentales mais avec des extrema pas toujours en phase.

Le programme de minimisation de l'erreur est également utilisé comme pour la modélisation isotrope. Afin de s'affranchir de la dépendance du point de départ et du risque de trouver un minimum local, le résultat du fit correspond au meilleur résultat parmi ceux issus de 1000 points de départ aléatoires.

Les résultats expérimentaux et simulés de la zone A sont présentés sur la figure 4.20 pour la réflectivité et sur 4.21 pour le contraste et la dérivée associée. Le contraste ρ est défini comme étant le rapport entre les réflectivités S et P. Les valeurs du fit sont résumées dans la table 4.3. La position des maxima est correcte dans le cas des spectres de réflectivité ce qui n'était pas le cas avec le modèle isotrope. En revanche pour la polarisation P, l'amplitude des oscillations de la courbe simulée ne correspond pas toujours à celle expérimentale.

Lors de l'expérience de goniométrie, la taille du spot de la source laser n'est pas la même en incidence normale (diamètre 1mm) et en incidence quasi rasante (diamètre 3mm). Par conséquent, comme l'échantillon n'est pas homogène d'après les résultats de la cartographie, les propriétés de la zone étudiée peuvent légèrement changer avec l'angle ce qui n'est pas pris en compte dans le modèle anisotrope.

La correspondance entre les courbes expérimentales et simulées est semblable à celle obtenue dans ce chapitre de livre (Gómez-Rivas et al., 2008) qui présente des graphes de contrastes et de dérivées en réflectivité

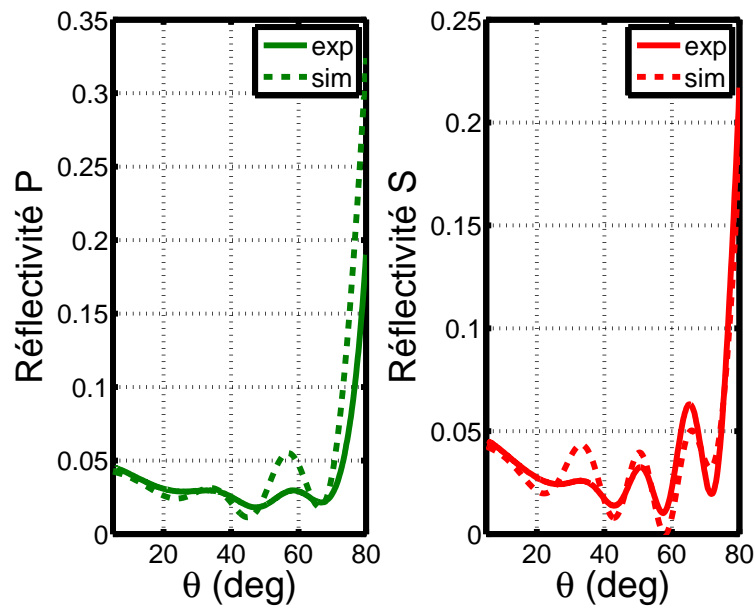


FIGURE 4.20 – Réflectivité de la zone A à la longueur d'onde $488nm$. Les courbes simulées sont obtenues à partir d'un modèle anisotrope. En pointillé, le résultat numérique et trait continu, le résultat expérimental.

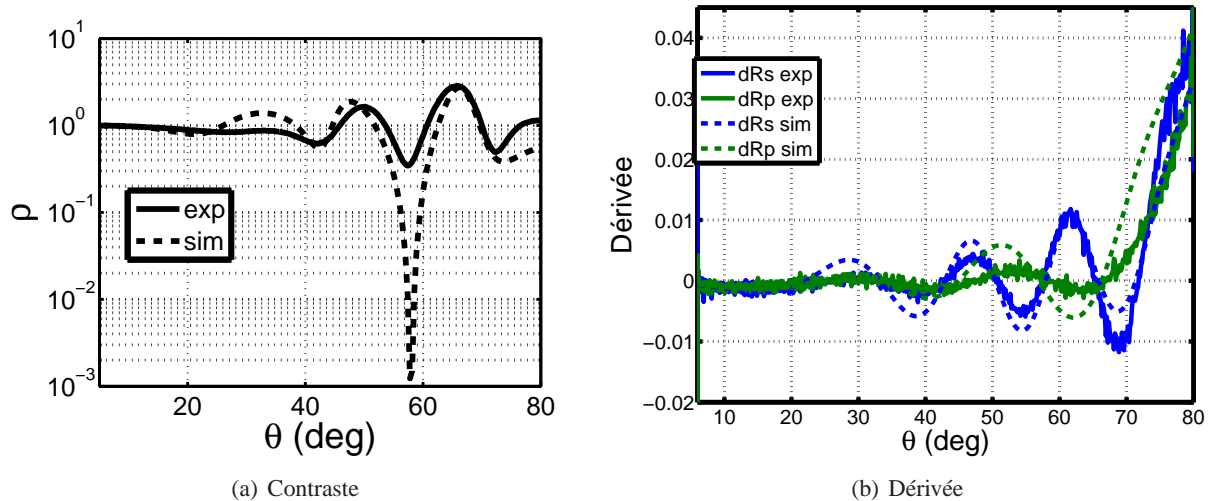


FIGURE 4.21 – Spectres expérimentaux et simulés du contraste à gauche et de la dérivée à droite d'un point de la zone A de l'échantillon 1111 à la longueur d'onde $488nm$. Ces spectres ont été obtenus à partir des valeurs des réflectivités en fonction de l'angle. En pointillé, le résultat numérique et trait continu, le résultat expérimental.

Échantillon	Résultats de fit	Valeurs de référence (estimées avec un facteur de remplissage $f = 0.12$ et du modèle d'indice)
A longueur d'onde : $488nm$	hauteur : $1373nm \pm 5nm$ $\epsilon_{\perp} = (1.058 \pm 0.01)^2$ $\epsilon_{\parallel} = (1.25 \pm 0.01)^2$ $k = 0.03 \pm 0.007$	hauteur $\sim 1400nm$ $\epsilon_{\perp} = 1.09^2$ $\epsilon_{\parallel} = 1.25^2$ $k = 0$

TABLE 4.3 – Comparaison des valeurs issues des fits sur les relevés expérimentaux de la zone A avec celles de références. Les valeurs de références ont été obtenues à partir des équations 4.55 et 4.54 appliquées au facteur de remplissage déterminé à partir des images MEB.

et en transmission de couches de nanofils de *GaP*. Ainsi le modèle anisotrope est beaucoup plus satisfaisant que le modèle isotrope utilisé précédemment.

Le contraste traduit le degré de biréfringence de la couche anisotrope. Comme la différence d'indice entre l'air et le *GaN* est beaucoup plus faible que celle avec le *GaP*, les valeurs de contraste sont moins importantes (facteur 10) que dans l'étude du *GaP* (Muskens et al., 2006).

D'après la table 4.3, les valeurs déterminées par le fit sont bien en accord avec celles estimées à partir des modèles d'indice décrits par les équations 4.54 et 4.55 et un facteur de remplissage correspondant aux images MEB ($f = 0.12$). L'indice du *GaN* intervenant dans ces équations provient de la loi de Sellmeier de la publication (Yu et al., 1997b).

Les indices effectifs anisotropes déterminés par le fit des courbes expérimentales contiennent une partie imaginaire faible mais non négligeable (k). Cette perte pourrait provenir de la diffusion de la lumière dans la couche de nanofils et/ou à la surface de la couche. Les diamètres des nanofils et les espaces inter-fils de l'échantillon sont sublongueur d'onde mais ces dimensions sont néanmoins légèrement grandes pour que le mode de fonctionnement corresponde parfaitement au régime des grandes longueurs. Par conséquent de la diffusion est présente en raison de l'interaction entre la lumière et les nanofils. La hauteur des fils ainsi que leur alignement les uns par rapport aux autres n'étant pas parfaits, la diffusion dans la couche et à la surface sera différente suivant les zones observées. Par ailleurs l'absorption est modélisée par une constante k ; un modèle plus élaboré aurait peut être permis d'obtenir des courbes simulées plus proches des courbes expérimentales.

La représentation d'une couche de nanofils denses par une couche anisotrope suivant les modèles d'indice 4.54 et 4.55 donne cependant une première description assez satisfaisante des résultats expérimentaux.

Zone B

La zone B est également peu homogène comme la zone A. La cartographie à $488nm$ a permis de mesurer des relevés de réflectivité. La figure 4.22 présente les courbes de réflectivité tandis que la figure 4.23 illustre le contraste et les dérivées angulaires. La correspondance entre les courbes est également satisfaisante pour cette seconde zone de l'échantillon 1111.

les valeurs trouvées pour la hauteur et les indices sont résumées dans le tableau 4.4. Elles sont assez proches des valeurs de référence calculées à partir des modèles d'indice pour le facteur de remplissage correspondant à celui des images MEB.

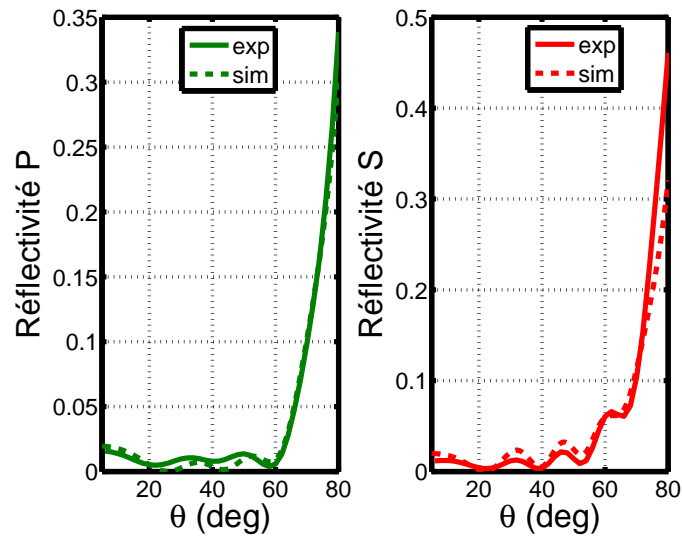


FIGURE 4.22 – Goniométrie d'un point de la zone B à la longueur d'onde $488nm$ de l'échantillon 1111. Les courbes simulées sont obtenues à partir d'un modèle anisotrope. En pointillé, le résultat numérique et trait continu, le résultat expérimental.

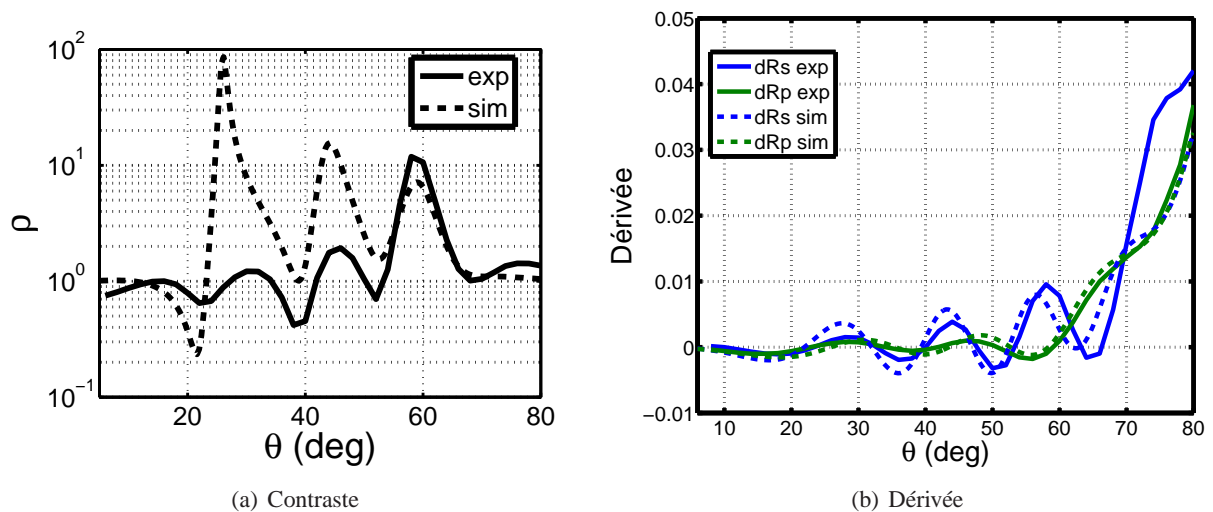


FIGURE 4.23 – Spectres expérimentaux et simulés du contraste à gauche et de la dérivée à droite d'un point de la zone B de l'échantillon 1111 à la longueur d'onde $488nm$. Ces spectres ont été obtenus à partir des valeurs des réflectivités en fonction de l'angle. En pointillé, le résultat numérique et trait continu, le résultat expérimental.

Échantillon	Résultats de fit	Valeurs de référence (estimées à partir des images MEB et du modèle d'indice)
B longueur d'onde : $488nm$	hauteur : $1902nm \pm 5nm$ $\epsilon_{\perp} = (1.16 \pm 0.01)^2$ $\epsilon_{\parallel} = (1.37 \pm 0.01)^2$ $k = 0.04$	hauteur $\sim 2000nm$ $\epsilon_{\perp} = 1.16^2$ $\epsilon_{\parallel} = 1.41^2$ $k = 0$

TABLE 4.4 – Comparaison des valeurs issues des fits sur les relevés expérimentaux de la zone B avec celles de références. Les valeurs de références des indices ont été obtenues à partir des équations 4.55 et 4.54 appliquées au facteur de remplissage déterminé à partir des images MEB.

4.4.3.2 Échantillon 1004

Les résultats expérimentaux et simulés sont présentés sur la figure 4.24.

La modélisation de la réflectivité de l'échantillon 1004 est plus proche des résultats expérimentaux que dans le cas de l'échantillon 1111. Cette observation est surprenante compte tenu de la présence d'une couche coalescée d'épaisseur non fixe à la base des fils. Cependant comme l'épaisseur de cet échantillon est plus de quatre fois inférieure à celle du 1111, les spectres expérimentaux sont beaucoup moins structurés ce qui les rend plus "faciles" à modéliser.

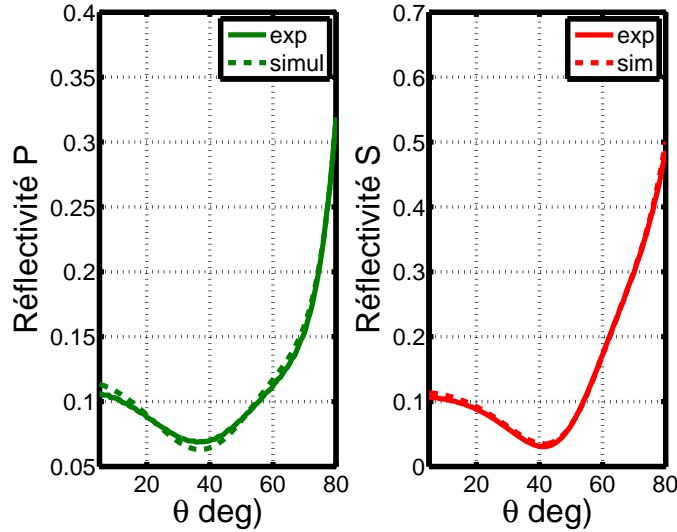


FIGURE 4.24 – Réflectivité de l'échantillon 1004 à la longueur d'onde $488nm$. En pointillé, le résultat numérique et trait continu, le résultat expérimental. Le modèle anisotrope est plus satisfaisant que celui isotrope précédent.

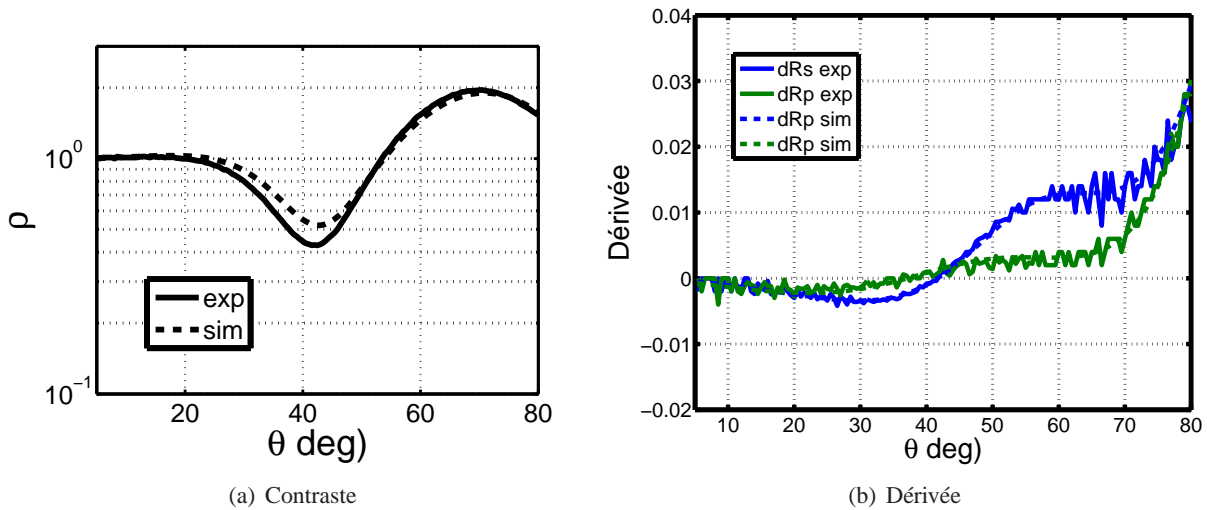


FIGURE 4.25 – Spectres expérimentaux et simulés du contraste à gauche et de la dérivée à droite d'un point de l'échantillon 1004 à la longueur d'onde $488nm$. Ces spectres ont été obtenus à partir des valeurs des réflectivités en fonction de l'angle. En pointillé, le résultat numérique et trait continu, le résultat expérimental. Les courbes simulées sont très proches de celles expérimentales.

Les valeurs des paramètres estimés sont :

- ▷ hauteur : $392nm \pm 5nm$
- ▷ $\epsilon_{\perp} = (1.16 \pm 0.01)^2$
- ▷ $\epsilon_{\parallel} = (1.32 \pm 0.01)^2$
- ▷ $k = 0.06 \pm 0.007$

Le facteur de remplissage estimé à partir des images MEB valait $f = 0.16$, par conséquent les valeurs théoriques sont $\epsilon_{\perp} = 1.12^2$ et $\epsilon_{\parallel} = 1.33^2$. Les valeurs de permittivité estimées à partir du modèle anisotrope de la couche sont bien en accord avec les valeurs issues du modèle d'indice.

L'échantillon n'était plus disponible pour réaliser des images MEB correspondant parfaitement à la zone observée en goniométrie. Par conséquent l'épaisseur est légèrement inférieure à celle observée sur l'image MEB, cette différence s'explique par la présence d'un gradient de température au niveau du substrat lors de la croissance des nanofils ce qui crée des fluctuations d'épaisseur comme il a été constaté sur l'échantillon 1111 lors des expériences de réflectivité en longueur d'onde et en incidence normale.

Ainsi contrairement au modèle isotrope, la modélisation des ensembles de nanofils denses et désordonnés par une couche effective anisotrope permet aux courbes simulées de goniométrie de décrire les courbes expérimentales de manière assez satisfaisante. Cette première description utilise le modèle d'indice décrit par les équations 4.54 et 4.55. Ce modèle anisotrope va maintenant être utilisé pour faire une estimation théorique du rendement d'extraction de telles couches.

4.5 Extraction de lumière

4.5.1 Émission d'un dipôle dans une couche anisotrope

Wasey et Barnes ont écrit un article de référence sur l'émission d'un dipôle dans une structure constituée de plusieurs couches isotropes, (Wasey and Barnes, 2000b). Le calcul repose sur le lien entre le vecteur de Hertz et les champs électrique et magnétique d'une part et l'intégrale de Sommerfeld d'autre part.

Tout d'abord, les champs émis par l'oscillation d'un dipôle électrique situé dans un milieu homogène et isotrope, peuvent être représenté par le vecteur de Hertz $\vec{\Pi}$:

$$\vec{E} = k^2 \vec{\Pi} + \nabla \nabla \cdot \vec{\Pi} \quad (4.56)$$

$$\vec{H} = -i\omega\epsilon \nabla \wedge \vec{\Pi} \quad (4.57)$$

avec \mathbf{k} le vecteur d'onde correspondant à ω dans le milieu considéré et le vecteur d'Hertz $\vec{\Pi}$:

$$\vec{\Pi} = \frac{\vec{p}_o \exp(ikr)}{4\pi\epsilon r} \quad (4.58)$$

où p_o est le moment dipolaire et r la distance entre le dipôle et le point de calcul des champs.

Cette dernière équation peut être ré-écrite dans une base cylindrique, en utilisant la relation de Sommerfeld (Sommerfeld, 1909) :

$$\vec{\Pi} = \frac{ip_o}{4\pi\epsilon} \int_0^\infty \frac{u}{l} J_0(u_\rho) \exp(il|z|) du \quad (4.59)$$

Cette équation traduit une décomposition de l'émission dans une base d'onde plane. J_o est la fonction de Bessel d'ordre 0, u est la valeur du vecteur d'onde dans le plan et $l = \sqrt{k^2 - u^2}$ est la composante du vecteur d'onde perpendiculaire au plan. Cette décomposition facilite le calcul des coefficients de réflexion et transmission intervenant dans le calcul.

Cependant ce calcul n'est valide que sous certaines conditions :

- ▷ les milieux sont isotropes,
- ▷ le milieu contenant le dipôle est non dissipatif (ϵ purement réelle),
- ▷ les interfaces sont des plans infinis,

- ▷ la longueur d'onde, la séparation entre émetteurs et entre n'importe quel interface doit être grande par rapport à la taille du dipôle afin de se placer dans l'approximation d'un dipôle ponctuel.

La distance entre le dipôle et les interfaces est un paramètre extrêmement important. Lorsque la source est située près d'une extrémité, des effets de champ proche peuvent apparaître et fortement modifier les propriétés de la source par rapport à un matériau massif.

L'article (Wasey et al., 2000) décrit le cas où le dipôle émet dans un milieu anisotrope. Le type d'anisotropie considéré correspond exactement à la situation avec les nanofils : un milieu anisotrope uniaxe avec l'axe optique de l'anisotropie qui est perpendiculaire aux interfaces. Barnes et al distinguent le cas où le dipôle est vertical, du dipôle horizontal. Les résultats sont normalisés par la puissance qu'émettrait le dipôle en l'absence d'interface, autrement dit dans un matériau massif.

Pour que le résultat soit correct, il faut vérifier la convergence du calcul. L'intégrale de l'équation 4.59 est calculée numériquement. Ainsi la valeur numérique de du de l'équation 4.59 ainsi que la borne supérieure de l'intégrale sont deux paramètres importants qui vont influencer le résultat. Cette méthode a été mise en œuvre et vérifiée en comparant les résultats obtenus avec ceux de la publication (Wasey and Barnes, 2000a).

Dans la suite de ce sous-chapitre, les différents résultats précédents vont être utilisés afin de calculer le rendement d'extraction de différentes couches de nanofils.

Afin de comprendre les différents phénomènes caractérisant le rendement d'extraction, les structures étudiées seront de plus en plus complexes. Par ailleurs l'extraction sera calculée pour un facteur de remplissage compris entre 0 et 100% afin de discuter de l'évolution du comportement de la structure sur l'ensemble du domaine même si le modèle d'indice présenté dans la partie 4.4.2, n'est valide *strico sensus* que pour $f < 30 - 40\%$. Il est important de garder cette information en mémoire.

Les nanofils seront, sauf exception, toujours entourés d'air. Cette hypothèse n'est pas incompatible avec l'étude de superstrats différents de l'air comme la silice car en pratique le superstrat ne pénètre quasiment pas dans la couche de nanofils lors du dépôt.

Tous les résultats d'extraction seront présentés avec une normalisation par la puissance émise dans du matériau massif de même indice anisotrope que la couche de nanofils et non par la puissance émise dans la structure comme dans le chapitre précédent. En effet il est difficile de prédire l'impact qu'aura l'environnement proche et désordonné du puits quantique sur son émission. Ce point sera discuté dans la dernière partie de ce chapitre.

4.5.2 Couches de nanofils droits semi-infinis

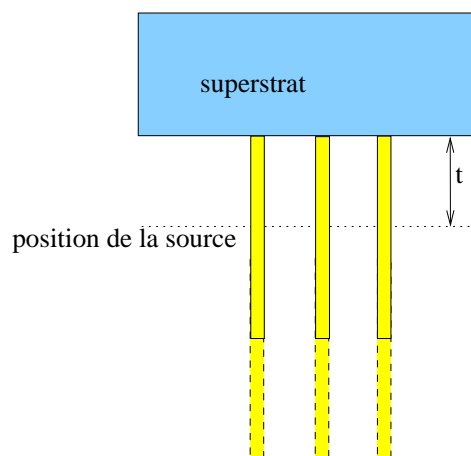


FIGURE 4.26 – Structure semi-infinie.

Étudions tout d'abord le cas d'une structure semi-infinie émettant dans un superstrat d'indice n_{sup} telle que

représentée sur la figure 4.26. Soit t la distance par rapport à l'interface. Dans le cas des LEDs typiques de Kishino (Sekiguchi et al., 2008), la distance t est de l'ordre de $600nm$ pour un superstrat d'air et de $700nm$ pour un substrat de silicium.

La couche semi-infinie va permettre de voir l'influence de l'interface entre les milieux sur l'extraction de la lumière issue d'un dipôle.

Le rendement d'extraction d'une couche semi-infinie de nanofils vers un superstrat d'air et de silice est présenté sur la figure 4.27 pour un dipôle vertical, planaire et isotrope. La structure simulée étant semi-infinie, la moitié de la lumière est émise vers le bas qui n'ayant pas d'interface, ne renvoie jamais de puissance. Par conséquent la puissance extraite sera au maximum égale à 0.5.

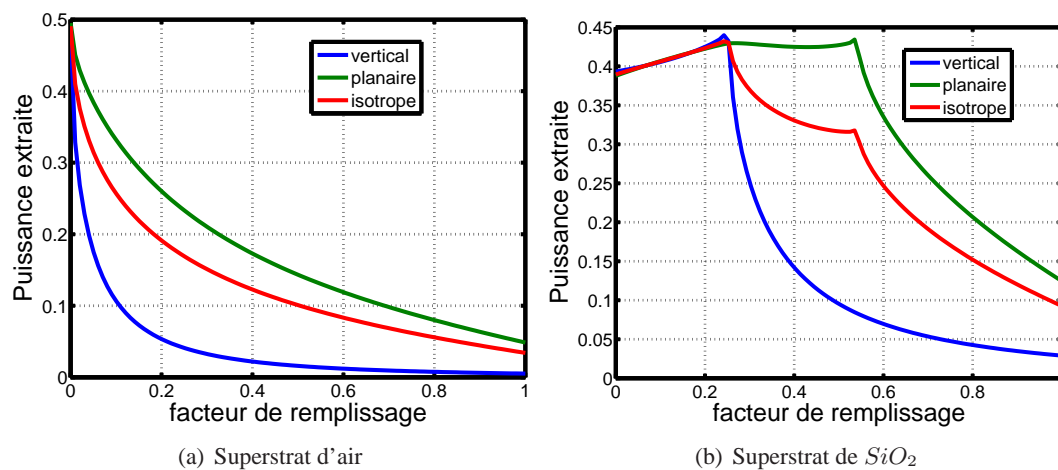


FIGURE 4.27 – Puissance extraite de couches denses de nanofils semi-infinis en fonction du facteur de remplissage, pour différents superstrats. Les nanofils sont entourés d'air et la longueur d'onde est $\lambda = 450nm$. Le résultat est normalisé par la puissance émise dans du matériau massif de même indices anisotropes.

On peut remarquer sur la figure 4.27, que dans le cas d'un superstrat d'air, le maximum d'extraction est obtenu pour un facteur de remplissage de $f = 0$ pour toutes les polarisations ; tandis que pour le superstrat de SiO_2 , deux maxima sont présents, pour $f = 0.27$ et $f = 0.53$ pour la polarisation planaire et de ce fait pour la polarisation isotrope également. La polarisation verticale a au contraire un seul maximum.

Pour comprendre ces différents maxima, il est nécessaire de rappeler certaines propriétés :

- ▷ l'extraction de lumière d'un milieu vers un autre est maximum lorsque les deux milieux ont le même indice optique, ce qui revient à une absence d'interface,
 - ▷ l'émission de lumière par un dipôle n'est pas isotrope angulairement comme il a été montré dans la partie 3.4.1,
 - ▷ Benisty et al. explique dans (Benisty et al., 1998), qu'un dipôle planaire moyen (moyenne azimutale) a une émission à la fois TE et TM avec les orientations de champs définies dans la publication. Pour avoir une source parfaitement uniforme la répartition dans un milieu isotrope est de $3/4$ TE et $1/4$ TM. Un dipôle vertical rayonne au contraire une polarisation uniquement TM. Un dipôle isotrope est constitué de deux dipôles planaires et d'un dipôle vertical,
 - ▷ dans le milieu anisotrope particulier correspondant aux couches de nanofils, il a été vu que la polarisation ordinaire est semblable à la polarisation TE et respectivement la polarisation extraordinaire avec la polarisation TM,
 - ▷ chacune des polarisations est associée à un indice particulier n_o dans un cas et n_e dans l'autre.
- Ainsi, la polarisation TE est reliée à n_o quelque soit la direction de propagation, en revanche la polarisation

TM est liée à l'indice n_e dont la valeur est dépendante de la direction de l'onde. Par conséquent, un optimum d'extraction est obtenu pour chaque polarisation à un facteur de remplissage différent.

Dans le cas de la polarisation ordinaire, le facteur de remplissage correspondant à un maximum doit vérifier la relation :

$$n_{sup}^2 = n_o^2 = \epsilon_{\perp} = \epsilon_{srg} \left(1 + \frac{2f\alpha}{1-f\alpha} \right) \quad (4.60)$$

Dans le cas d'un superstrat d'air, $n_{sup} = 1$, le facteur de remplissage correspondant vaut dans ce cas $f_o = 0$; respectivement avec un substrat de silice $n_{sup} = 1.5$ et $f_o = 0.53$. Ces valeurs sont donc parfaitement en accord avec les résultats de la figure 4.27.

Le facteur de remplissage pour lequel la polarisation extraordinaire est la mieux extraite, est plus délicat à calculer car l'indice n_e dépend de la direction de propagation, or un dipôle émet dans toutes les directions. Néanmoins une valeur approchée peut être obtenue en résolvant l'équation :

$$n_{sup}^2 = n_{||}^2 = \epsilon_{||} = f\epsilon_{nw} + (1-f)\epsilon_{srg} \quad (4.61)$$

Le facteur de remplissage solution de cette équation vaut $f_e = 0$ dans le cas du superstrat d'air, et $f_e = 0.25$ pour le superstrat de silice. Ces valeurs sont en adéquation avec les maxima de la figure 4.27. Le dipôle vertical a un diagramme d'émission centré sur le plan xy , ce qui correspond à $\theta = \pi/2$ et $n_e(\theta) = \sqrt{\epsilon_{||}}$. A l'opposé, le dipôle planaire a un diagramme d'émission centré autour de l'axe z . Le dipôle vertical de polarisation TM aura donc toujours une plus forte résonance que le dipôle planaire au facteur de remplissage f_e . La résonance au point f_o est renforcée pour le dipôle planaire par rapport à f_e et elle n'existe pas pour le dipôle vertical qui n'a pas de polarisation TE.

Pour un superstrat d'air, pour tous les facteurs de remplissage non nuls, les indices effectifs de la couche de nanofils sont supérieurs à l'indice du superstrat : il y a réflexion totale et une partie de la lumière est piégée dans la couche, le rendement d'extraction est ainsi toujours inférieur à 0.5 et ne fait que diminuer sur les courbes de la figure 4.27(a).

Pour un substrat de silice, il y a réflexion totale seulement à partir de $f = 0.53$ pour la polarisation TE et $f = 0.27$ pour la polarisation TM. On peut ainsi remarquer sur les courbes 4.27(b) deux zones, la première approximativement en pallier pour les facteurs de remplissage avant la réflexion totale et la seconde au delà, où le rendement ne fait que décroître avec l'augmentation des indices anisotropes en raison de l'augmentation du facteur de remplissage.

Étudions maintenant la réflectivité sur un substrat très classique pour la fabrication des nanofils en MBE : le silicium. La problématique est différente de celle du superstrat : la puissance extraite vers le silicium doit être la plus faible possible afin d'éviter des pertes dans ce dernier.

L'indice d'un substrat de silicium à la longueur d'onde de $450nm$ est $4.67 + 0.147 \times i$. Par conséquent il n'existe pas de facteur de remplissage pour lequel les milieux inférieur et supérieur ont les mêmes indices de réfraction. Dans le cas d'un substrat de silicium, le facteur de remplissage optimum sera celui qui permet d'obtenir la plus forte réflectivité sur le silicium car ce matériau est absorbant à $450nm$.

La figure 4.28 présente la puissance extraite dans le silicium lorsque la source se situe à une distance $t = 700nm$. Cette distance est caractéristique de la position du puits quantique par rapport au substrat dans les LEDs de Kishino. Dans le cas d'un dipôle planaire, la réflectivité la plus grande est obtenue pour un facteur de remplissage égal à 0. En effet plus la différence d'indice est faible, plus il y a de lumière transmise dans le silicium.

La position de la source par rapport à l'interface peut influencer la puissance émise par le dipôle dans la structure. Afin de mesurer l'importance de ce phénomène, la variation de cette puissance en fonction de la distance par rapport à l'interface est présentée sur la figure 4.29 dans le cas d'un superstrat de silice. A partir d'une distance source-interface de $400nm$ la différence d'émission par rapport à un milieu sans interface devient inférieure à 1% pour toutes les polarisations.

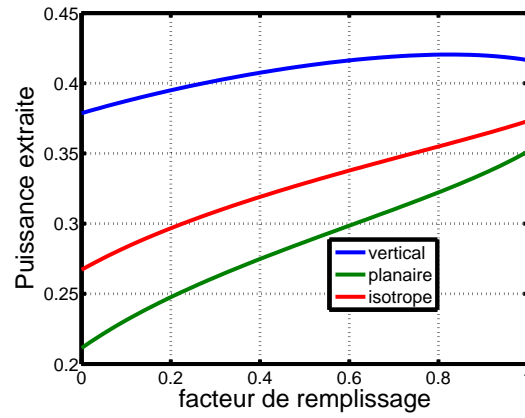


FIGURE 4.28 – Puissance extraite dans le silicium depuis des couches de nanofils denses semi-infinis en fonction du facteur de remplissage. Le substrat de silicium est situé à une distance de $700nm$. Les nanofils sont entourés d'air et la longueur d'onde est $\lambda = 450nm$. Le résultat est normalisé par la puissance émise dans du matériau massif de mêmes indices anisotropes que la couche de nanofils.

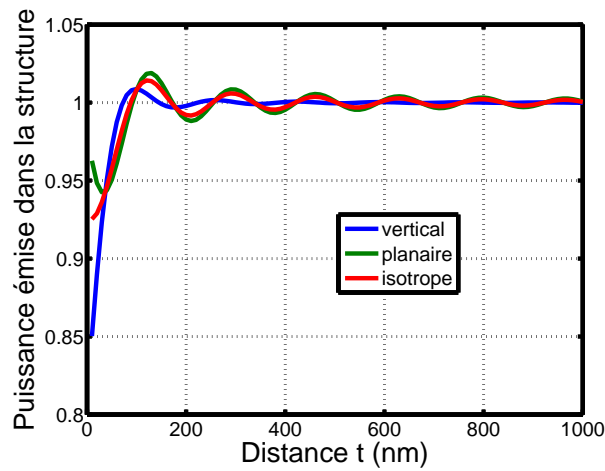


FIGURE 4.29 – Puissance totale rayonnée par une couche de nanofils denses semi-infinis en contact avec un superstrat de silice en fonction de la distance t par rapport à l'interface. Le facteur de remplissage est fixe et vaut 0.4, $\lambda = 450nm$. Les nanofils sont entourés d'air. Le résultat est normalisé par la puissance émise dans du matériau massif de même indice.

4.5.3 Couches de nanofils droits de taille finie

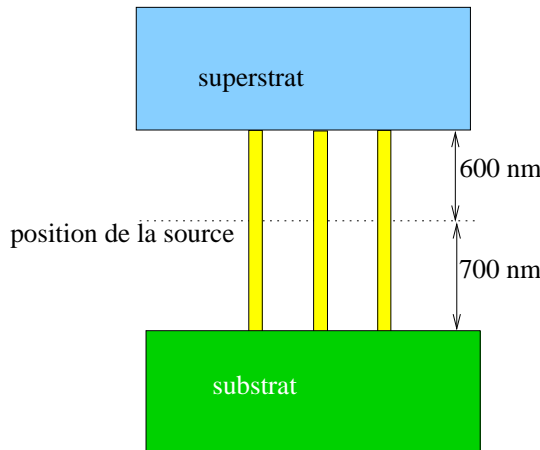


FIGURE 4.30 – Structure de taille finie.

Dans le cas d'une structure de dimension finie, d'autres effets interviennent sur la puissance émise par le dipôle en raison de l'organisation de la structure sous la forme d'une cavité. Le cas semi-infini précédent consistait seulement en une demi-cavité. La position de la source est encore plus importante surtout lorsque le superstrat ou le substrat est un bon réflecteur : des interférences constructives peuvent renforcer à la fois la puissance de la source et l'extraction de lumière.

La valeur caractéristique de la distance entre le puits quantique et le silicium, est toujours égale à 700nm tandis que la distance par rapport au superstrat vaut 600nm , comme représentée sur la figure 4.30.

Le rendement d'extraction de telles structures est représenté sur la figure 4.31 pour un superstrat d'air et un superstrat de SiO_2 . La dimension finie de la cavité constituée de la couche de nanofil avec le substrat et le superstrat introduit des oscillations Fabry Péro. Tant que la couche de nanofils n'est pas en réflexion totale avec le superstrat (faibles facteurs de remplissage), les oscillations Fabry-Pérot ont un plus faible impact sur la puissance extraite.

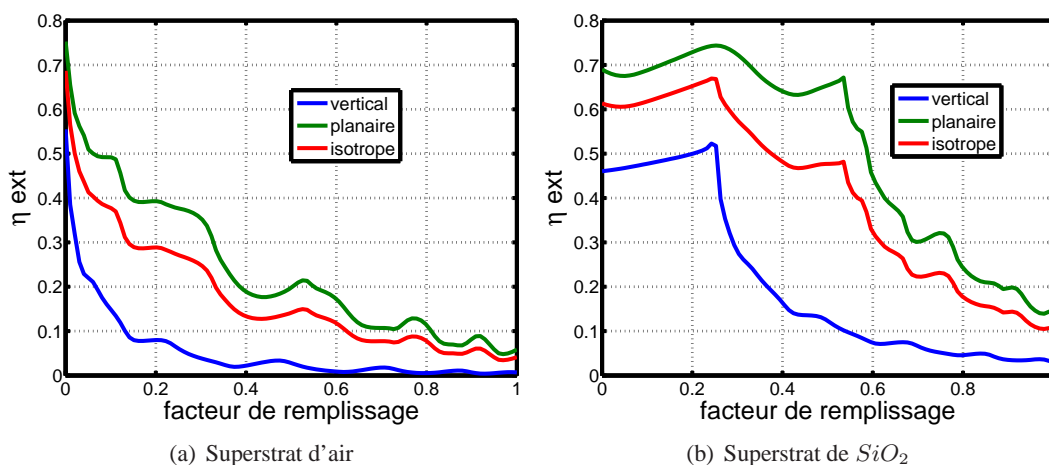


FIGURE 4.31 – Rendement d'extraction de couches de nanofils denses sur un substrat de silicium en fonction du facteur de remplissage, pour différents superstrats. Les nanofils sont entourés d'air et la longueur d'onde est $\lambda = 450\text{nm}$.

Le rendement d'extraction de la lumière émise par un dipôle planaire pour un superstrat de silice est

supérieur à 65% sur une large gamme de facteur de remplissage : de $f = 0$ à $f = 0.53$, avec un maximum pour $f = 0.23$ à 74% en raison de la bonne transmission vers la silice pour cette gamme de facteurs de remplissage. Dans le cas de l'air, cette plage de valeur est quasiment inexistante car le rendement décroît fortement avec l'augmentation du facteur de remplissage car la couche de nanofils est toujours en réflexion totale vis à vis de l'air.

Afin de mieux comprendre l'évolution des courbes de la figure 4.31, il est intéressant d'étudier, pour un facteur de remplissage donné, l'impact de la position du dipôle dans la cavité sur l'extraction de lumière. Soit t la distance entre le dipôle et l'interface avec le superstrat, la hauteur totale de la couche de nanofils est toujours égale à $1.3\mu m$. La figure 4.32 présente le résultat pour un superstrat d'air.

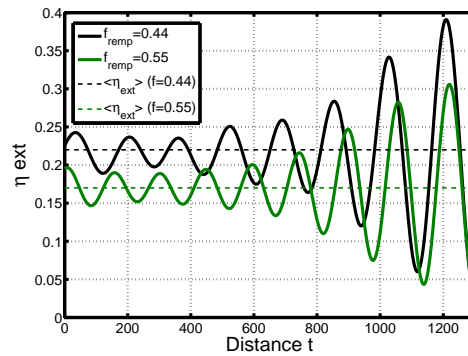


FIGURE 4.32 – Rendement d'extraction vers l'air d'un dipôle planaire dans une couche de nanofils denses sur un substrat de silicium pour différents facteurs de remplissage. Le résultat est normalisé par la puissance émise par un dipôle planaire dans du matériau massif.

La variation de la position de la source introduit une modulation de l'extraction autour d'une valeur moyenne qui dépend du facteur de remplissage. En effet la valeur moyenne du rendement en fonction de la distance t vaut approximativement 0.22 pour $f = 0.44$ et 0.17 pour $f = 0.55$: la valeur moyenne du rendement diminue avec le facteur de remplissage car la différence d'indices avec l'air augmente. Dans le cas de la silice l'évolution de la valeur moyenne est semblable à l'évolution du rendement de la figure 4.27(b).

Par ailleurs, pour un facteur de remplissage donné, la fréquence de battement est fixe alors que l'amplitude augmente lorsque le dipôle se rapproche de l'interface avec le silicium. La position des maxima et des minima dépend du facteur de remplissage. Le silicium joue le rôle de réflecteur et suivant la position de la source les interférences peuvent être constructives ou destructives. Ainsi pour chaque facteur de remplissage, il y aura des valeurs optimales pour t .

Ces observations expliquent l'évolution des courbes de la figure 4.31 : le rendement d'extraction a un comportement global dont la tendance (augmentation et diminution) est très proche de l'évolution du rendement d'extraction issu d'une structure avec des nanofils semi-infinis. Les fluctuations des courbes autour des valeurs moyennes sont dues à la réflexion de la lumière sur les interfaces de la cavité qui dépendent entre autres des indices anisotropes et donc du facteur de remplissage. Ces réflexions peuvent soit augmenter le rendement d'extraction soit au contraire le diminuer par rapport à la valeur moyenne du rendement d'extraction. Pour la position de la source à une distance de $600nm$ de l'interface avec le superstrat, on retrouve sur la courbe $f = 0.44$ (resp. $f = 0.55$), le rendement $\eta_{ext} = 0.176$ (resp. $\eta_{ext} = 0.2$) issu de la figure 4.31(a). Dans le cas de $f = 0.44$, $\eta_{ext} < \eta_{ext-moy}$ tandis que pour $f = 0.55$, $\eta_{ext} > \eta_{ext-moy}$.

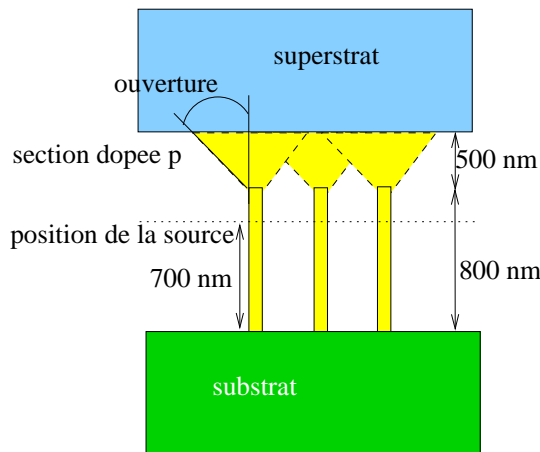


FIGURE 4.33 – Forme d’une LED à nanofils. Le puits émetteur est localisé juste au dessus de la zone de type n. Au dessus de ce puits se situe les autres puits quantiques ainsi que la zone intrinsèque.

4.5.4 Design d’une géométrie de LED à nanofils optimale d’un point de vue de l’extraction

Les nanofils qui compose une couche typique d’une LED, comportent une base dopée n et une partie supérieure dopée p en forme de cône inversé comme il a été vu dans le chapitre 2. La structure est décrite sur la figure 4.33. Cette nouvelle géométrie introduit deux nouveaux paramètres qui vont influencer la valeur du rendement d’extraction : il y a tout d’abord la hauteur de la zone dopée p et ensuite l’ouverture angulaire de cette même zone. D’après les publications de Kishino, les dimensions typiques de la zone p sont une hauteur de l’ordre de 500nm et une ouverture comprise entre 6° et 25° . Il y a généralement plusieurs puits axiaux au sein d’un même fil. Nous considérerons par la suite le premier de ces puits à partir de la zone de type n. Par conséquent le puits quantique émetteur n’est pas exactement à la base de la zone de type p mais 100nm plus bas en raison de la présence des autres puits et de la zone intrinsèque au dessus de premier puits. Rappelons de plus que la densité des nanofils est comprise entre 0.2 et $1.8 \times 10^{10}\text{cm}^{-2}$ ce qui est équivalent à un facteur de remplissage compris entre 0.1 et 0.9 . Les LEDs à nanofils fabriquées dans le cadre du projet Carnot Eclairage ont des dimensions similaires et un facteur de remplissage de l’ordre de 10% .

Dans cette partie, les nanofils sont de formes similaires aux LEDs à nanofils existantes. L’absorption par les porteurs libres ou par les puits quantiques est négligée. Les couches de nanofils ne seront pas absorbantes.

Pour modéliser la forme de cône inversé, la section dopée p est découpée en sous-couche d’indices croissants et d’épaisseur 5nm . Cette épaisseur a été choisie de manière à avoir une convergence des calculs d’extraction. Les valeurs des indices anisotropes de ces couches dépendent du facteur de remplissage mais également de l’angle d’ouverture et de leur position par rapport à la base du cône.

Pour certains angles et certaines hauteurs, les sections dopées p peuvent créer une couche 2D par coalescence comme représenté sur la figure 4.33. L’angle à partir duquel, pour une hauteur donnée, les fils vont coalescer dépend du facteur de remplissage. La table 4.5 présente des valeurs typiques de la hauteur de coalescence pour les facteurs de remplissage de 0.2 et 0.5 .

Ainsi la formation d’une couche 2D au dessus des fils est possible même pour des valeurs d’angle d’ouverture *a priori* faibles. Cette couche aura de fortes conséquences sur l’extraction de lumière vers le superstrat.

Afin de comprendre l’influence de l’angle d’ouverture ainsi que de la hauteur, une structure semi-infinie avec une zone dopée p et un superstrat d’air va être étudiée dans les parties suivantes avec à chaque fois l’un des deux paramètres (la hauteur ou l’angle) fixée à une valeur caractéristique.

	angle d'ouverture	hauteur de coalescence (nm)
$f = 0.2$	5°	570nm
	10°	285nm
$f = 0.5$	1°	940nm
	3°	310nm
	5°	185nm
	10°	90nm

TABLE 4.5 – Hauteur de coalescence de la zone dopée p pour différents facteurs de remplissage et différents angles d'ouverture.

4.5.4.1 Influence de l'ouverture angulaire

Dans cette étude, la hauteur est fixée à 500nm . Le rendement d'extraction de couches de nanofils semi-infinis sous un superstrat d'air va être évalué pour différents angles d'ouverture de la zone de type p. Le résultat est présenté sur la figure 4.34.

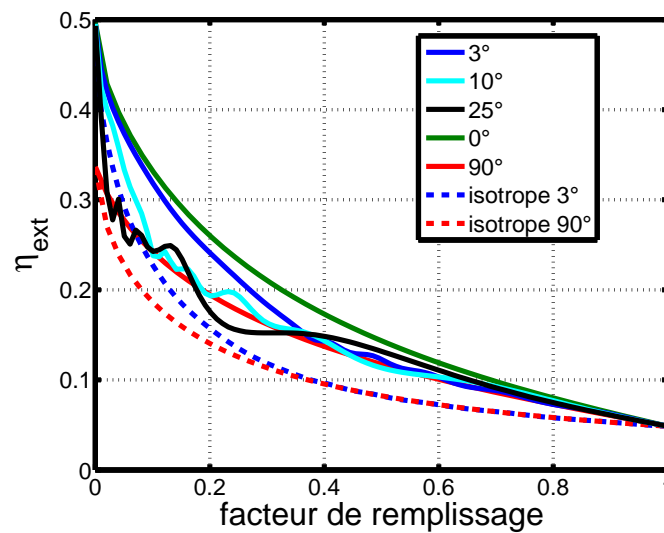


FIGURE 4.34 – Rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage d'une structure semi-infinie comportant une partie dopée p de différents angles d'ouverture en degré. La hauteur est égale à 500nm et le superstrat est de l'air. Le dipôle émetteur a une polarisation planaire. En pointillés, le rendement d'extraction d'un milieu isotrope avec $n = n_{\parallel}(f)$.

La coalescence introduit des oscillations dans l'évolution du rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage. Par exemple pour un angle d'ouverture de 3°, la coalescence se produit à partir d'un facteur de remplissage de $f = 0.37$ environ ; or des oscillations du rendement d'extraction apparaissent au delà de ce même facteur de remplissage.

Par ailleurs dans le cas d'un dipôle vertical (non représenté sur le graphe) où seul la polarisation TM intervient, il n'y a pas d'oscillations du rendement d'extraction.

Rappelons qu'une source planaire est décomposée suivant deux polarisations : TE et TM. Ces deux polarisations dans le cas particulier de l'anisotropie des nanofils denses sont équivalentes respectivement à la polarisation ordinaire et extraordinaire. Ces deux polarisations n'étant pas rattachées au même indice de réfraction en raison de l'anisotropie, ne peuvent pas avoir la même évolution du rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage ce qui introduit des oscillations.

La courbe en pointillés bleus de la figure 4.34 (resp. rouge) représente le rendement d'extraction d'une source planaire dans une couche isotrope d'indice $n = n_{\parallel}(f)$ pour un angle d'ouverture de 3° (resp. 90°). On constate qu'aucune oscillation n'est présente dans le cas d'un milieu isotrope. Il en est de même lorsque

facteur de remplissage	hauteur de coalescence (nm)
0.15	362nm
0.3	185nm
0.5	90nm
0.8	25nm

TABLE 4.6 – Hauteur de coalescence de la zone dopée p pour différents facteurs de remplissage et pour un angle d'ouverture de 10° .

$n = n_\perp(f)$. C'est donc l'anisotropie qui introduit les oscillations pour un dipôle planaire.

Ainsi l'introduction de la structure conique augmente progressivement l'indice vu par la lumière se dirigeant vers le superstrat. Par conséquent dans le cas d'un substrat d'air, le rendement d'extraction avec une structure conique, sera toujours inférieur au rendement d'une structure droite non dopée, quelque soit l'angle d'ouverture du cône. En revanche pour un superstrat de silice et pour les faibles facteurs de remplissage, la structure conique pourra permettre une adaptation d'indice entre la zone droite dopée n et entourée d'air, et le superstrat.

4.5.4.2 Influence de la hauteur de la zone dopée p

Fixons maintenant l'angle d'ouverture à 10° et observons l'influence de la hauteur de la zone dopée p sur le rendement d'extraction. La partie sous le cône est toujours choisie comme semi-infinie et la source se situe à 100nm de la base de la partie conique.

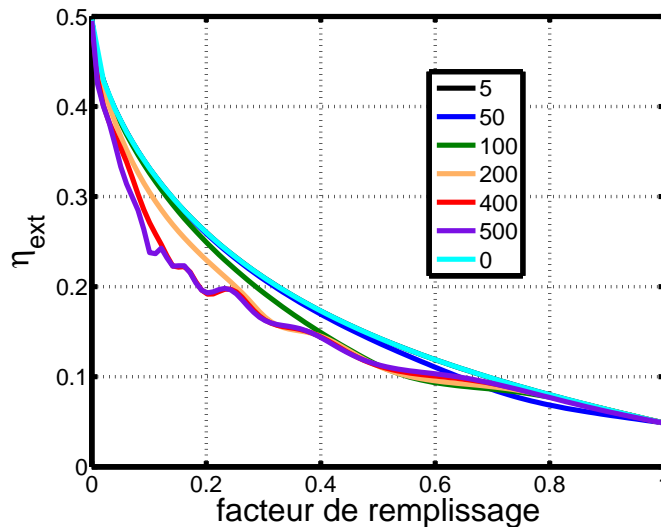


FIGURE 4.35 – Rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage d'une structure semi-infinie comportant une partie dopée p de différentes hauteurs en nm pour un angle d'ouverture de 10° et un superstrat d'air. Le dipôle a une polarisation planaire.

La figure 4.35 représente le rendement d'extraction de la structure décrite précédemment pour un superstrat d'air. On constate que la hauteur a également une influence sur la valeur de ce rendement.

La table 4.6 présente les hauteurs de coalescence pour un angle de 10° . Pour des facteurs de remplissage ne permettant pas la coalescence, le rendement diminue avec l'épaisseur de la zone p en raison de l'augmentation progressive de l'indice avec la hauteur du fil.

Des oscillations modulent l'intensité des courbes car la zone de type p crée une zone d'indice plus grand que l'indice du superstrat et celui de la zone de type n (effet cavité). Lorsqu'il y a coalescence l'amplitude des oscillations est renforcée. Le nombre d'oscillations du rendement d'extraction augmente avec l'épaisseur de la

zone dopée p.

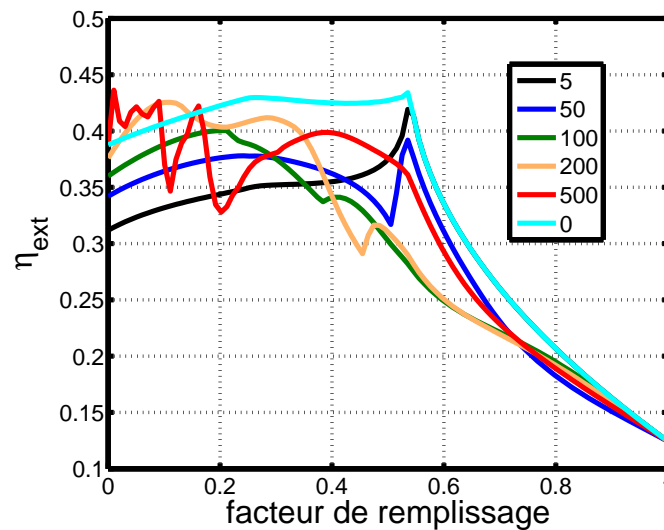


FIGURE 4.36 – Rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage d'une structure semi-infinie comportant une partie dopée p de différentes hauteurs en nm pour un angle d'ouverture de 10° et un superstrat de silice.

Pour un superstrat de silice (fig. 4.36), on peut obtenir pour de faibles facteurs de remplissage, une adaptation de l'indice entre le superstrat et la zone dopée p. Cela aboutit à de fort rendement d'extraction. Par exemple pour un facteur de remplissage de 0.1, pour une épaisseur de $50nm$, le facteur de remplissage en haut de la zone dopée p vaut 0.15 ce qui correspond à des indices $n_{\perp} = 1.11$ et $n_{\parallel} = 1.3$. Pour une épaisseur de $200nm$, le facteur de remplissage en haut des fils est égal à 0.35 ce qui conduit à des indices $n_{\perp} = 1.29$ et $n_{\parallel} = 1.66$. Ainsi l'épaisseur de $200nm$ permet d'avoir des indices plus proches de celui de la silice que l'épaisseur de $50nm$. C'est ce qu'on observe sur la figure 4.36, pour $f = 0.1$, la courbe orange correspondant à $200nm$ est au dessus de la courbe bleue foncée ($50nm$) et de la courbe bleue ciel ($0nm$).

En revanche si l'épaisseur est suffisante pour créer une couche coalescée, il n'y a plus adaptation d'indice et le rendement d'extraction est plus faible que celui sans la couche p, c'est par exemple le cas pour l'épaisseur de $500nm$ pour $f > 0.1$, sauf en un point particulier qui pourrait être du à un effet de cavité.

Par conséquent le rendement d'extraction avec une zone dopée p peut être supérieur à celui obtenu avec des fils droits.

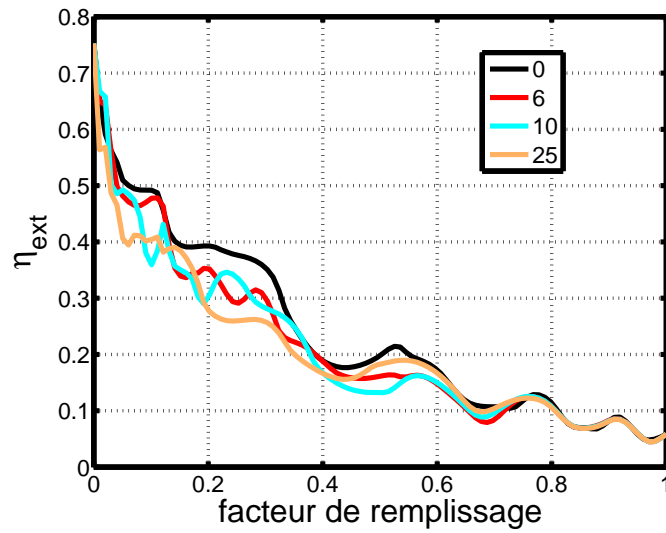
4.5.4.3 Design final

La structure complète comporte à la fois la zone dopée p (hauteur $500nm$), une zone dopée n de taille finie (hauteur $800nm$) et un substrat de silicium. Les figures 4.37(a) et 4.37(b) présentent le rendement d'extraction de telles structures pour un superstrat d'air et de silice.

Tout d'abord le superstrat de silice est plus intéressant que le superstrat d'air : sur une large gamme de facteurs de remplissage, le rendement d'extraction est élevé.

D'après ce qu'il a été vu précédemment, il était prévisible que le résultat présente de nombreuses oscillations en fonction du facteur de remplissage. Les courbes de la structure complète sont assez difficiles à interpréter. On peut néanmoins remarquer que dans le cas d'un superstrat de silice, un angle d'ouverture nul ne correspond pas au meilleur rendement d'extraction pour les faibles facteurs de remplissage. En effet l'élargissement des fils dans la zone dopée p, permet une adaptation d'indice entre la zone n et le superstrat comme il a été vu précédemment.

Les LEDs du projet qui ont un facteur de remplissage de l'ordre de 10% et un angle entre 6° et 25° ont donc



(a) Air

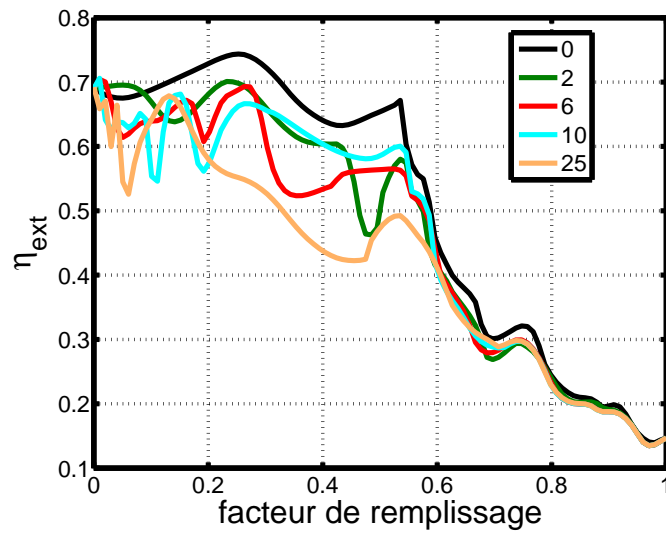
(b) SiO₂, $n = 1.5$

FIGURE 4.37 – Évolution du rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage de la structure 4.33 avec une gaine d'air pour différents angles d'ouverture (en degré) pour un superstrat d'air 4.37(a) et de silice 4.37(b). Le substrat est du silicium pour chacun des cas.

un rendement théorique de 40% vers l'air et de 65% vers la silice. Ces valeurs de rendement qui correspondent à des structures brutes après croissance directement sur un substrat de silicium, sont intéressantes. Le rendement est en effet très nettement supérieur au 4% de rendement d'extraction des LEDs planaires brutes. Par ailleurs le rendement des LEDs planaires actuelles atteint 80% grâce à de nombreuses étapes technologiques (cf. chapitre 2). Les structures à base de nanofils ont donc un rendement inférieur aux LEDs planaires à l'état de l'art mais ces valeurs de rendements sont obtenus sur un substrat absorbant, le silicium, et sans aucune modification après la croissance, ce qui ouvre des voies nouvelles et prometteuses pour la réalisation de LED efficaces et à bas coût.

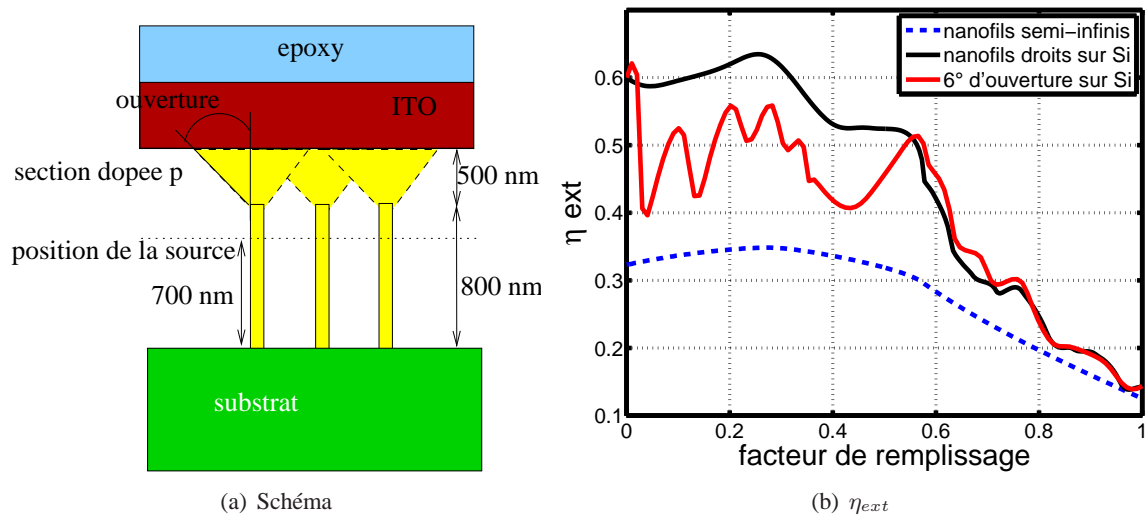


FIGURE 4.38 – Évolution du rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage. Le superstrat est composé de 100nm d'ITO puis de l'époxy semi-infini. Différentes situations de substrat sont tracées : le cas où les nanofils sont droits et semi-infinis en pointillés bleus, le cas où les nanofils sont de taille finie sur un substrat de silicium en noir et le cas avec la zone de type p présenté sur le schéma de gauche avec un angle d'ouverture de 6° en rouge.

Un superstrat plus réaliste pour une application LED comporterait 100nm d'ITO ($2.04 + 0.03i$) avec de l'époxy ($n = 1.54$) au delà afin de réaliser la prise de contact électrique comme dans la publication (Liu et al., 2010). La figure 4.38 présente le rendement d'extraction des trois cas d'étude : nanofils semi-infinis, de taille finie et avec la zone conique de type p.

On constate sur la courbe correspondant aux nanofils semi-infinis que la présence de l'ITO crée de l'absorption ce qui provoque une diminution du rendement d'extraction par rapport à un substrat de silice seul et dont l'indice est très proche de celui de l'époxy. La diminution est plus importante pour les faibles facteurs de remplissage.

Les nanofils droits sur le substrat de silicium permettent d'obtenir un rendement d'extraction supérieur à 50% de la lumière émise pour $f > 0.56$, avec un maximum de 62% pour $f = 0.23$. Cette valeur d'extraction est également à comparer à celle de 80% des LEDs à l'état de l'art.

L'ajout de la forme conique provoque un déplacement de la position du maximum d'extraction ainsi que sa diminution. Néanmoins l'efficacité du rendement atteint une valeur maximale de 55% pour des facteurs de remplissage de 0.2 et 0.28. Le rendement reste de plus supérieur à 40% jusqu'au facteur de remplissage de 0.58.

Les LEDs fabriquées par Kim (Kim et al., 2004) ont une zone dopée p en forme d'aiguille. Le diamètre des fils vaut environ 80nm, ce qui place la structure en limite de validité par rapport à l'approximation grande longueur d'onde. Le rendement d'extraction d'une telle structure est représenté sur la figure 4.39(b). Le substrat est dans ce cas particulier un buffer de GaN. La présence de l'aiguille augmente très légèrement le rendement d'extraction par rapport à une terminaison droite.

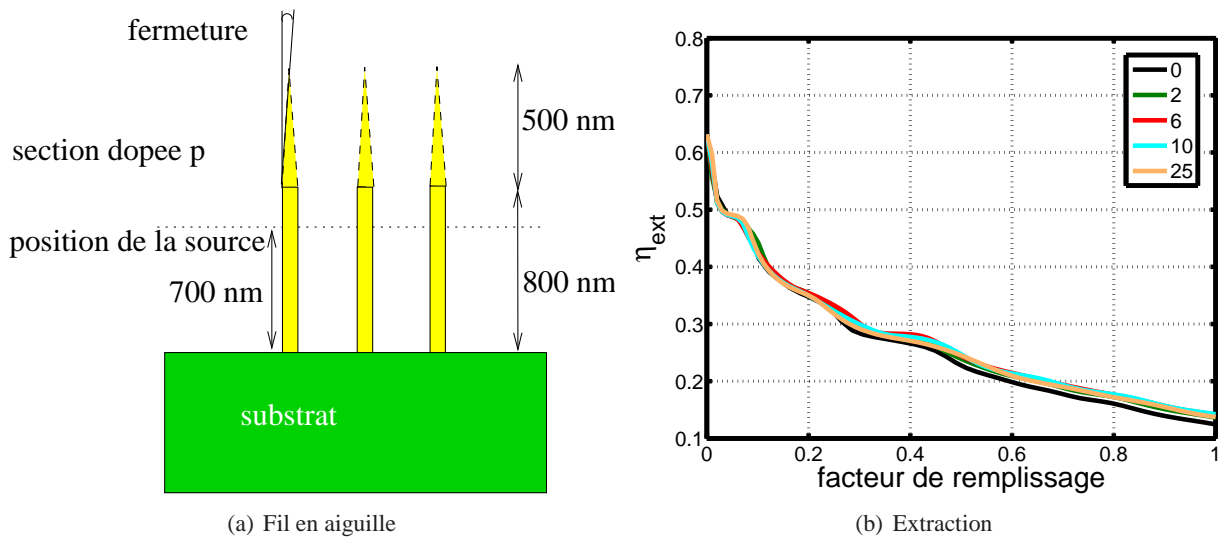


FIGURE 4.39 – Rendement d'extraction en fonction du facteur de remplissage d'une structure avec une zone dopée p en forme d'aiguille pour différents angles de fermeture en degré (Kim et al., 2004). Le substrat est du GaN, le superstrat et la gaine de la silice. La structure est identique aux nanofils de la figure 4.33 : une hauteur de la zone dopée p égale à 500 nm, de la zone dopée n 700 nm et de la zone intrinsèque entre le puits quantique et la zone dopée p 100 nm.

4.6 Conclusion et discussion des limitations des modèles mis en œuvre

Les couches de nanofils denses ayant des diamètres très sub-longueur d'onde ont été étudiées. Des expériences de goniométrie ont mis en évidence l'insuffisance d'un modèle isotrope. Cette conclusion n'était pas observable sur des expériences de réflectivité en incidence normale réalisées dans la littérature également sur des nanofils de GaN. Une modélisation de la structure sous la forme d'une couche anisotrope a été validée expérimentalement sur différents échantillons de nanofils MBE ce qui a permis de valider le modèle anisotrope et le modèle d'indice en fonction du facteur de remplissage.

A la suite de ces résultats l'extraction de la lumière a été estimée pour différentes structures de LEDs à nanofils correspondant à des objets existants dans la littérature. Pour un superstrat de silice et un substrat de silicium, le rendement est supérieur à 65% sur une large gamme de facteur de remplissage : de $f = 0$ à $f = 0.53$, avec un maximum pour $f = 0.23$ à 74%. Une structure plus réaliste comportant au dessus des nanofils une bicouche d'ITO de 100 nm et d'époxy a également été évaluée. La présence de l'ITO diminue le rendement en raison de l'absorption dans cette couche mais néanmoins des valeurs de rendement d'extraction comprises entre 40% et 60% sont atteintes pour des facteurs de remplissage inférieurs à 60% environ et sur un substrat de silicium. Ces résultats sont très encourageants pour l'obtention de systèmes d'éclairage à LED bas coût. Ces différents résultats ont fait l'objet d'une publication soumise à Optics Express.

Il pourrait être intéressant de comparer ces valeurs théoriques avec des valeurs expérimentales obtenues en photoluminescence afin de s'affranchir des problèmes de rendement quantique interne. Les puits quantiques des LEDs à nanofils actuelles du projet de Carnot Éclairage, ne luminescent pas tous systématiquement. Il est donc impossible de mesurer le ratio entre la puissance émise et la puissance extraite car le rendement de la puissance de pompe est inconnu.

Une autre utilisation possible des couches de nanofils denses pourrait concerner le domaine des filtres polarisants et des sources polarisées. De tels filtres sont utilisés notamment dans le domaine de l'affichage avec les écrans à cristaux liquides ou les pico-projecteurs par exemple. Actuellement les polariseurs sont à base d'un plastique d'alcool polyvinylique (PVA). Cette matière est peu fragile et peu chère. Cependant le filtre laisse passer moins de 50% de la lumière et le contraste est de l'ordre de 100. Utiliser les nanofils pour remplacer le PVA est possible à condition d'utiliser un matériau permettant d'obtenir le contraste désiré. Le GaN d'après ce

qu'il a été vu précédemment ne fait pas partie de ces matériaux en revanche le GaP pourrait convenir. Cependant les techniques de fabrication ne seront pas compétitives par rapport à celles du PVA.

Remplacer la source non polarisée permettrait de s'affranchir de l'utilisation d'une partie des filtres polarisants (ceux qui créent la lumière polarisée) sans perdre la moitié de la puissance générée. Un design renforçant la polarisation de l'émission d'une LED à nanofils denses pourrait être une solution à ce problème.

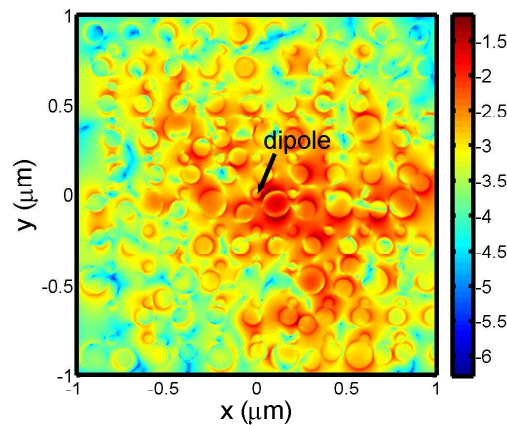


FIGURE 4.40 – Intensité du champ électrique émise par un réseau désorganisés comportant des nanofils de diamètres 50, 100 ou 150nm (échelle log.). La source est un dipôle planaire placé au centre de la structure et émettant à 450nm. Le champ est observé à l'extrémité des nanofils dans un plan perpendiculaire à l'axe des fils. Le calcul est été réalisé par FDTD. Des pics d'émission sont présents loin de la position de la source.

Dans toute la partie 4.5, l'émission d'un dipôle dans une couche de nanofils denses a été supposée identique à celle dans une couche anisotrope planaire d'une part et la diffusion a été négligée d'autre part.

L'émission et la propagation de la lumière dans les milieux chaotiques également appelé désordonnés, constitue un domaine de la physique à part entière. Dans certains cas de désordre, un renforcement de l'émission peut se produire (Sapienza et al., 2010). La figure 4.40 présente l'émission d'un dipôle dans une structure de nanofils désorganisés. Loin de la source, des pics d'émission de lumière existent dans l'espace d'air entre deux fils qui constituent dans ce cas un guide d'onde.

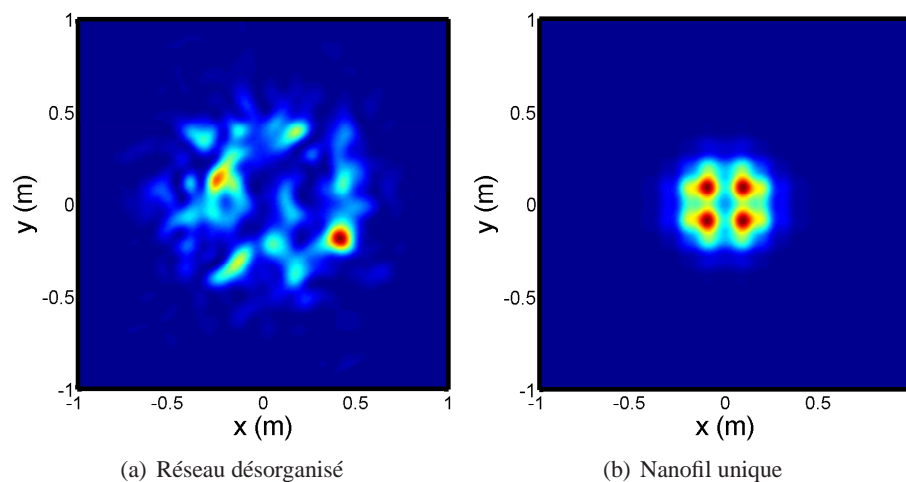


FIGURE 4.41 – Carte de champ lointain de l'émission d'un dipôle planaire placé au centre de la structure et émettant à 450nm. Le calcul est été réalisé par FDTD. La désorganisation brise les symétrie et élargit le diagramme d'émission.

La localisation d'Anderson est à la base de ces phénomènes d'émission particuliers. Elle permet d'expliquer également la diffusion dans les milieux denses (Wiersma et al., 1997). L'observation du champ lointain est représenté sur la figure 4.41(a) pour la structure précédente et 4.41(b) pour un dipôle dans un nanofil unique. Dans la structure désorganisée, l'émission n'est pas symétrique et est plus étendue que dans le cas d'un fil unique en raison de la diffusion dans la couche.

Il n'est clair aujourd'hui de savoir comment ces phénomènes peuvent modifier de manière sensible le comportement optique d'une LED à nanofils, voire de le dominer.

VERS LES RÉSEAUX DE NANOFILS ORGANISÉS

Résumé.

Ce quatrième chapitre porte sur la situation intermédiaire entre les deux concepts précédents. Les nanofils sont maintenant agencés périodiquement avec une distance entre les fils de l'ordre de la longueur d'onde. L'objectif de ce dernier chapitre est de présenter des perspectives que pourraient apporter une telle organisation et le travail numérique réalisé au cours de la thèse.

5.1 Introduction

Des LEDs planaires à cristaux photoniques 2D ont été présentées dans la littérature (Lourtioz et al., 2003). Un cristal photonique consiste en un arrangement périodique à une, deux ou trois dimensions de matériaux dont l'indice de réfraction est différent. Le principe physique qui va contrôler le comportement de la lumière dans une telle structure est les interférences entre les ondes dans le réseau. La recherche de configurations périodiques intéressantes pour l'extraction a fait l'objet de nombreuses études dans le cas des LEDs planaires *GaN*. Le dispositif comporte alors généralement entre la couche active et le superstrat, une couche de trous organisés périodiquement suivant un motif (Kim et al., 2007). L'avantage de ces dispositifs est que l'extraction a lieu directement vers l'air avec un rendement élevé, de plus la lumière rayonnée a un diagramme de rayonnement structuré.

Les LEDs planaires utilisant la technique de la rugosification de la surface avec un report de substrat permettent d'atteindre également de forts rendements d'extraction comme il a été vu dans le chapitre 2. Cependant en raison de la rugosité de surface, le diagramme d'émission est lambertien. Par ailleurs ces bons rendements d'extraction sont obtenus à travers un dôme d'époxy et non directement dans l'air. Le dôme d'époxy semble avoir l'inconvénient de s'opacifier sous de fort flux lumineux.

Ces deux types de LEDs ne s'adressent pas au même domaine d'utilisation. Les LEDs planaires avec rugosification n'extraient pas la lumière de manière structurée mais ont un coût de fabrication moins élevé. En général, de telles LEDs sont préférées dans des applications bas coût tels que l'éclairage, tandis que les LEDs à cristaux photoniques pourraient être utilisées pour des applications de projection par exemple.

Une réalisation de structures organisées directement pendant la croissance depuis le substrat permettrait de contourner certains problèmes rencontrés dans les LEDs à cristaux photoniques actuelles. De plus les épitaxieurs s'orientent actuellement vers de la croissance localisée de nanofils afin de pouvoir contrôler l'homogénéité de la couche de fils du point de vue du diamètre, de la hauteur des fils et de leur composition chimique.

Par ailleurs Kouno dans (Kouno et al., 2009) a observé sur des réseaux périodiques de 8 par 8 fils de *GaN* avec des puits d'*InGaN* par croissance MBE, une dépendance de la longueur d'onde d'émission du réseau en fonction de la période et du diamètre des fils. L'utilisation des nanofils sous la forme de réseaux périodiques ouvre une possibilité de contrôler l'émission de la lumière dans la couche et son extraction.

Une autre possibilité d'utilisation des nanofils serait de faire croître des fils à l'interface entre la couche planaire contenant l'émetteur et le superstrat. Dans ce second cas l'influence sur l'émission sera moins importante en revanche, le réseau de fils aura un impact sur l'extraction et la mise en forme du faisceau.

L'impact d'une structuration périodique sur une structure sera tout d'abord présenté. En effet l'introduction d'un cristal photonique va modifier d'une part les propriétés des modes guidés existants dans la structure, d'autre part la manière dont la lumière est émise à la fois dans et à l'extérieur de la couche. La caractérisation d'un objet à base de *GaN* visant à vérifier ces propriétés sera développée. Les atouts de ces phénomènes physiques pour les LEDs à cristaux photoniques seront également rappelés.

Dans un second temps je décrirai les deux principaux outils nécessaires pour connaître théoriquement les propriétés d'un cristal photonique afin de répondre aux besoins existants en vue d'un design de LED à nanofils organisés et des exemples d'utilisation de ces outils.

Dans tout ce chapitre, l'indice du matériau diélectrique sera égal à $n = 2.45$ sauf indication contraire.

5.2 Les effets physiques liés à l'introduction d'un cristal photonique et leurs potentiels pour les LEDs

5.2.1 Structuration peu profonde

5.2.1.1 Théorie

Considérons tout d'abord une couche planaire entourée d'air, d'épaisseur $h = 0.5a$ et d'indice $n = 2.5$. En raison des lois de réflexion et de réfraction de Fresnel, lorsqu'une source isotrope émet de la lumière dans cette

structure, une partie de la lumière émise est rayonnée hors de la couche alors qu'une autre est piégée.

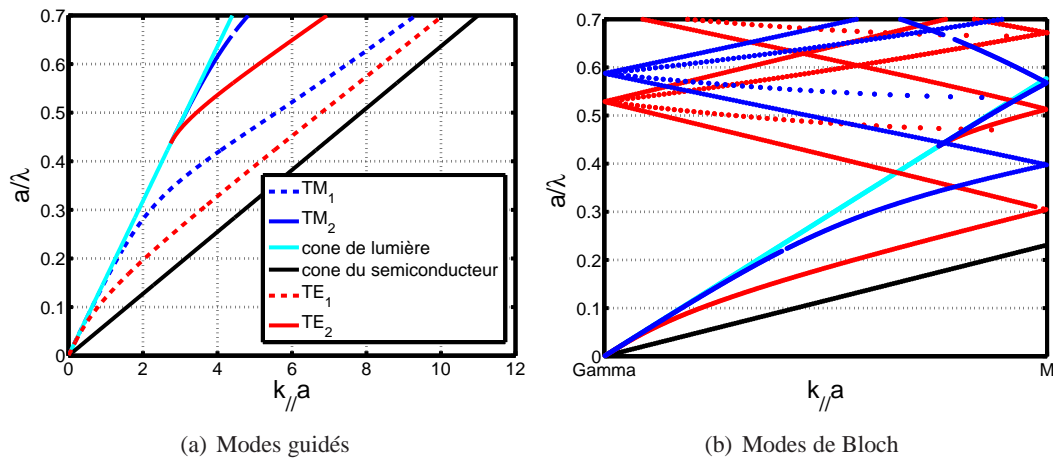


FIGURE 5.1 – Diagramme de bande d'une structure planaire sans périodicité 5.1(a) et avec un réseau artificiel à maille triangulaire de période a (pas de modification de l'indice de réfraction mais repliement des bandes) dans la direction ΓM 5.1(b), c'est le diagramme des photons libres. L'épaisseur de la couche vaut $0.5a$ et son indice $n = 2.5$. La structure est entourée d'air. a est la longueur caractéristique du système. Le cône de lumière se situe au dessus de la ligne bleue.

La lumière rayonnée est émise dans un continuum de modes situés au dessus du cône de lumière. La lumière piégée est constituée par un ensemble de modes discrets localisés. Ceux-ci présentent un caractère sinusoïdal à l'intérieur de la structure et une décroissance exponentielle dans les couches extérieures. Ils se propagent par réflexion totale interne. Les modes guidés de cette couche planaire entourée d'air sont représentés sur la figure 5.1(a). Comme il a été énoncé dans les chapitres précédents, les courbes de dispersion de ces modes se situant sous le cône de lumière, la lumière couplée à ces modes ne peut pas sortir de la couche. Le cône du semiconducteur constitue une limite basse.

L'introduction d'un réseau en surface à travers une modulation périodique de l'indice va modifier les propriétés de propagation des photons. Pour visualiser ces modifications il est intéressant de représenter les courbes de dispersion des nouveaux modes $\omega(k)$, c'est à dire le diagramme de bande du cristal photonique. En général, l'ordonnée de ces courbes est en fréquence réduite a/λ où a désigne la longueur caractéristique du système.

Introduisons dans cette partie, la périodicité de manière artificielle avec un réseau à maille triangulaire de période a mais sans modification de l'indice de réfraction de la couche (couche d'indice n avec des trous d'indice n). Les courbes de dispersion des modes guidés sont modifiées en raison de la diffraction par le réseau de la lumière précédemment guidée. La diffraction introduit ainsi de nouveaux modes, les modes de Bloch. Des nouvelles courbes de dispersion sont ajoutées aux précédentes en raison de la périodicité : c'est le diagramme des photons libres. Le résultat est présenté sur la figure 5.1(b) dans la direction ΓM qui correspond à une des directions caractéristiques de la première zone de Brillouin (PZB) (voir annexe A.5). La PZB est définie plus en détail dans l'ouvrage (Lourtioz et al., 2003).

Certains modes de Bloch sont au dessus du cône de lumière, c'est le cas par exemple pour le mode TE_1 pour $a/\lambda = 0.45$. Il y a donc un nouveau type de mode par rapport aux modes guidés précédents. Ce sont les modes résonants également appelé modes quasi-guidés ou modes à perte. Ils sont fortement localisés dans le cristal photonique. La diffraction par le réseau les ramène au dessus de la ligne de lumière où ils constituent des résonances dans le continuum d'états radiatifs.

Le repliement des bandes va également modifier la directivité de la lumière extraite. Par exemple, soit un réseau monomode dont le mode de Bloch a un vecteur d'onde planaire proche du centre du réseau réciproque, le point Γ . Ce point correspond à $k_{||} = 0$. Par conséquent dans cet exemple, la lumière extraite par diffraction

sera importante autour de l'axe vertical. Cette propriété peut être intéressante lorsque la source nécessite d'être très directive, soit pour une application de projection, soit pour pouvoir être couplée à une fibre optique. De nombreux exemples de comparaison entre un dispositif structuré et non structuré sont présentés dans la littérature (Wierer et al., 2004).

Les propriétés de repliement des bandes vont maintenant être en partie vérifiées expérimentalement.

5.2.1.2 Vérification expérimentale

Approche

Un échantillon dont le schéma est représenté sur la figure 5.2 a été réalisé. Il s'agit d'une couche de *GaN* partiellement gravée. Un puits d'*InGaN* est présent sous la structuration mise en œuvre après la croissance ; par conséquent la profondeur du réseau n'est pas très importante. Par ailleurs, le réseau gravé a une maille carrée pour des raisons technologiques.

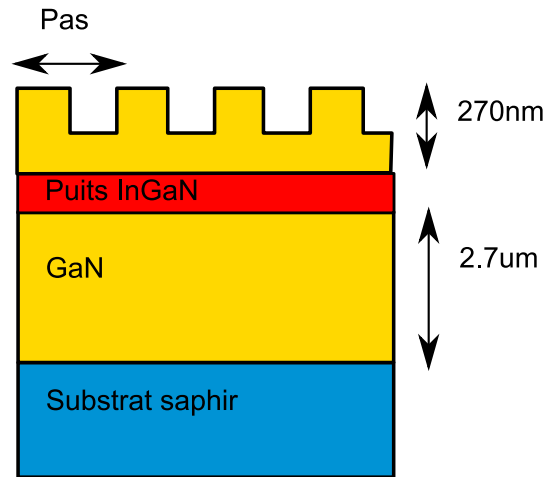


FIGURE 5.2 – Schéma de la structure réalisée pour observer le régime de modulation faible de l'indice dans cristal photonique, vue en coupe. Le réseau a une maille carrée avec un période de 350nm environ.

L'objectif était de vérifier expérimentalement les codes utilisés pour calculer les diagrammes de bandes et les diagrammes d'émission qui seront présentés dans la partie 5.3. Dans ce but un seul puits d'*InGaN* a été déposé afin d'avoir une émission localisée suivant l'axe z vertical. Malheureusement ces codes ne sont pas optimisés et sont difficiles à utiliser pour modéliser les structures épaisses comportant un nombre important de modes. Dans le cas de la structure de la figure 5.2 il y a une trentaine de modes TE et de même pour TM.

De ce fait, nous nous sommes donnés un objectif plus modeste, visant à comparer un diagramme de bande expérimental et celui théorique calculé par un repliement des bandes dans la première zone de Brillouin dans le régime de modulation faible de l'indice.

Description de l'échantillon

La technique de fabrication des cristaux photoniques consiste à graver une couche planaire par photolithographie associée à de la gravure. La technique de réalisation est décrite dans l'annexe A.6. Le motif obtenu est un réseau carré de pas $\sim 350\text{nm}$ sur une épaisseur de $\sim 210\text{nm}$. Le résultat est présenté sur la figure 5.3.

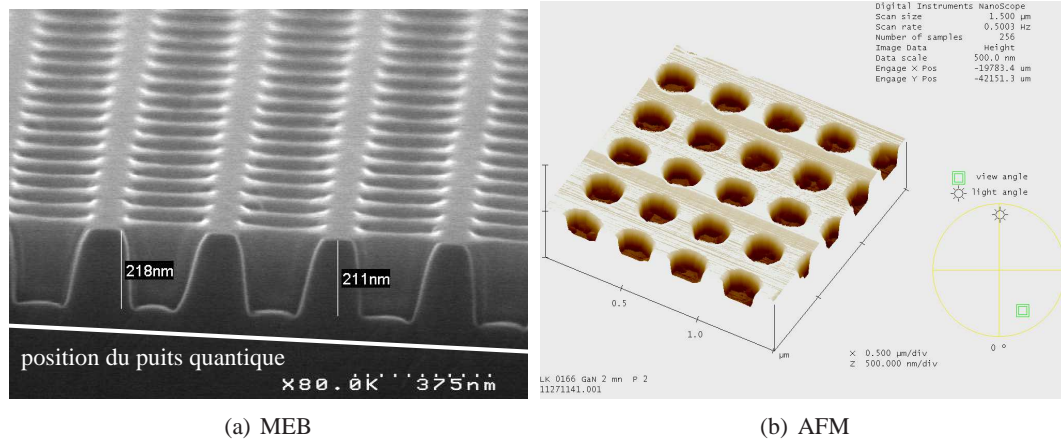


FIGURE 5.3 – Image d'un réseau fabriqué au CEA par la technique de photo-lithographie. L'image MEB a été réalisée par B. Martin tandis que les relevés AFM ont été effectués par R. Templier du DOPT.

Résultats

L'échantillon a été observé en micro-photoluminescence en mode confocal puis caractérisé en goniométrie de photoluminescence. Le confocal a permis d'observer les différences entre les zones gravées et les zones non gravées notamment à proximité d'un bord clivé. La goniométrie permet d'acquérir un diagramme de bande partiel.

En photoluminescence le laser vient exciter l'échantillon directement sur le *GaN* (figure 3.36(a)). Un filtre passe-haut placé avant la caméra permet d'éliminer la réflexion du laser et d'observer uniquement le signal de photoluminescence. L'objectif de microscope utilisé doit pouvoir transmettre le laser. Les observations ont donc été faites avec l'objectif $\times 10$ Ultrafluor pour $\lambda_{laser} = 350nm$.

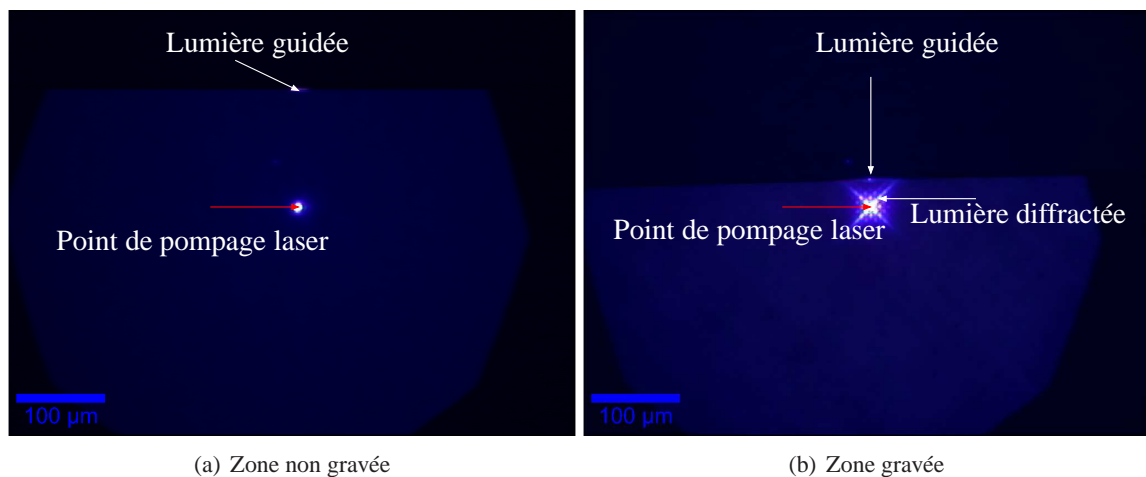


FIGURE 5.4 – Image caméra de l'extraction de lumière d'une couche 2D gravée ou non lors d'une expérience de micro-photoluminescence. La longueur d'onde d'excitation du laser est de $350nm$. Lorsque le pompage est réalisé sur une zone gravée, une partie de la lumière guidée est diffractée par effet réseau le long des axes de périodicité. La direction la plus visible est ΓX

Le résultat présenté sur la figure 5.4 montre des différences et des points communs entre la zone gravée et la zone non gravée. Dans chacun des cas une partie de la lumière sort directement depuis le point de pompage tandis qu'une autre est guidée et n'est extraite qu'au niveau du bord clivé. La zone gravée apporte de plus de la

diffraction de la lumière selon des directions privilégiées du réseau qui sont ΓM et ΓX . Les directions ne sont pas équivalentes, en effet la direction ΓX semble extraire plus de lumière.

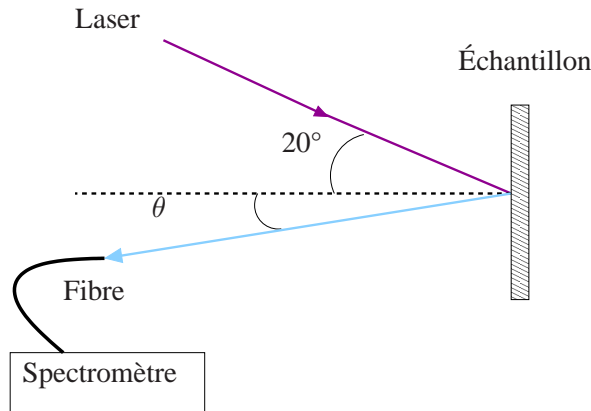


FIGURE 5.5 – Schéma de l'expérience de goniométrie en photoluminescence. Le laser d'excitation arrive sur l'échantillon avec un angle de 20°. Un goniomètre permet de faire varier l'angle de collection de la photoluminescence. Une fibre optique collecte le signal qui est analysé par un spectromètre pour l'étude en longueurs d'onde. Un filtre coupant la longueur d'onde du laser est positionné à l'entrée de la fibre.

Étudions maintenant la répartition angulaire de l'émission de photoluminescence en champ lointain de l'échantillon. L'excitation de l'échantillon est réalisée par un laser émettant à 350 ou 407nm. L'angle d'incidence du faisceau est choisie à 20° comme représenté sur la figure 5.5. Une fibre optique de diamètre 25μm est fixée à un bras de collection dont l'angle par rapport à la normale à l'échantillon est déterminé par l'utilisateur. Le signal de la fibre est ensuite envoyé à un spectromètre.

Le dispositif utilise un goniomètre à double rotation pour faciliter les réglages : le support de l'échantillon peut tourner autour d'un axe z et le bras de collection également. L'angle $\theta = 0^\circ$ est obtenu en repérant l'angle de réflexion spéculaire du laser auquel il faut retrancher $\theta = 20^\circ$. L'échantillon peut également tourner autour de la normale à sa surface ce qui permet de collecter les directions ΓM et ΓX sans modifier l'excitation laser.

Un filtre coupant la longueur d'onde du laser est placé avant l'entrée de la fibre. La longueur du bras étant de l'ordre de 20cm, la précision est de l'ordre de 0.5°.

Les spectres d'une zone gravée suivant les directions ΓM et ΓX ont été mesurés tous les degrés de 0 à 60° ainsi que ceux d'une zone non gravée. Le réseau correspondant à la zone observée a un pas de 345.7nm et des trous de diamètre entre 210 et 216nm.

Ces spectres ont été normalisés pour s'affranchir des interférences Fabry-Pérot entre l'interface avec le substrat et celle avec le superstrat et n'étudier que l'influence du cristal photonique. Dans ce but les valeurs mesurées de la zone non gravée sont soustraites à celles de la zone structurée. Par ailleurs il faut s'affranchir du diagramme d'émission du puits quantique, cela nécessite de connaître la réponse en longueur d'onde indépendamment de l'angle. En supposant que la réponse du puits ne fluctue pas beaucoup d'un point à l'autre de l'échantillon, la valeur normalisée précédente est ensuite divisée par le spectre d'une zone non gravée obtenue lors de l'observation en mode confocal. Ce type d'expérience a déjà été réalisé dans la littérature (David et al., 2005).

Le résultat est présenté sur la figure 5.6. Le filtre du laser intervenant pour $\theta = 20^\circ$ n'a pas eu l'effet escompté car le signal pour cet angle semble saturé pour les longueurs d'onde supérieures à 480nm et inférieures à 410nm. Des bandes dues à la présence des modes de Bloch sont visibles. L'épaisseur de GaN massif étant importante et l'émission du puits quantique étant comprise entre de 410 à 490nm, le nombre de modes est élevé.

Afin de mieux visualiser les modes en présence, il est plus commode de représenter les résultats avec $k_{||} = k_0 \sin(\theta)$ en abscisse et a/λ en ordonnée comme sur la figure 5.7. Les courbes correspondent alors au

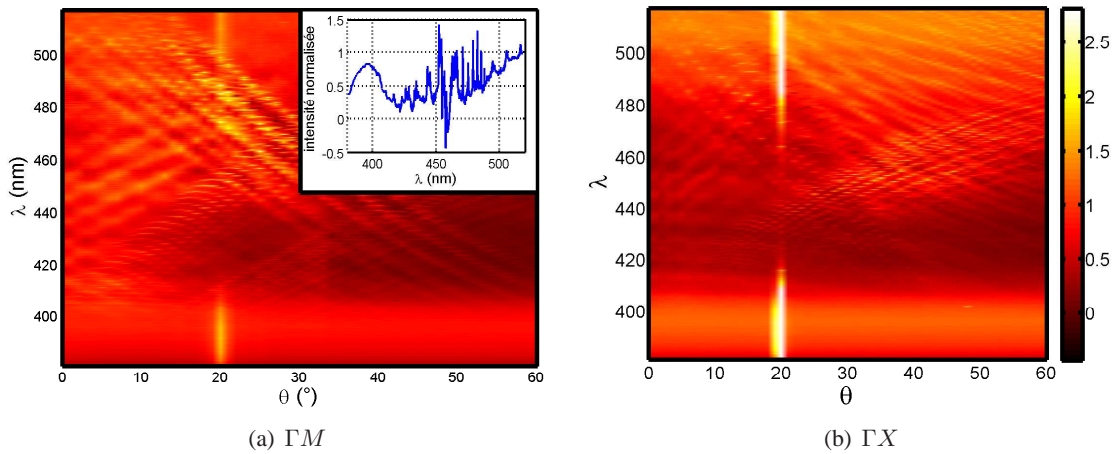


FIGURE 5.6 – Mesures de photoluminescence en goniométrie normalisées dans deux directions du réseau. Des résonances propres aux modes de Bloch sont visibles en champ lointain. L'angle θ est en degré. En insert, le détail du spectre de photoluminescence pour l'angle de 34° dans la direction ΓM .

diagramme de bande expérimental. Seuls les modes qui se couplent à la source et qui sont évanescent figurent sur ce diagramme.

Le pas du réseau étant grand (346nm), l'influence du cône de lumière n'est pas visible car celui-ci est présent pour des longueurs d'onde inférieures à $a/\lambda = 0.5$ pour un réseau à maille carré.

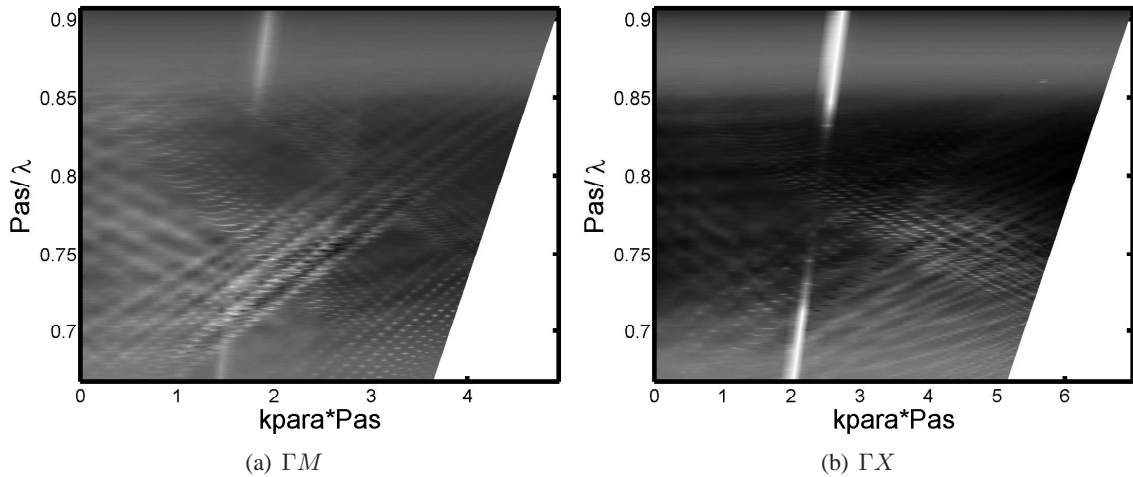


FIGURE 5.7 – Diagramme de bande expérimental d'un réseau gravé avec un pas de 345.7nm . Seuls les modes de Bloch qui sont couplés à la source et extraits par le réseau sont visibles sur le diagramme.

La profondeur du réseau étant faible devant l'épaisseur de la couche, les modes de Bloch théoriques ont été estimés par la méthode du repliement des bandes des courbes de dispersion des modes guidés. Le résultat est présenté sur la figure 5.8 pour la direction ΓM .

La figure 5.9(a) présente les mesures expérimentales, le diagramme de bande n'est pas complet : seuls les modes dont l'intensité du champ est maximum à la position de la source et qui sont au dessus du cône de lumière, peuvent être observés. De plus certains modes semblent plus intenses par rapport à d'autres. En calculant le diagramme de bande théorique par la méthode du repliement de spectre, les modes extraits correspondant sont identifiés comme les modes TE_p et TM_p avec p compris entre 12 et 27. Les modes de bas ordre n'ont pas

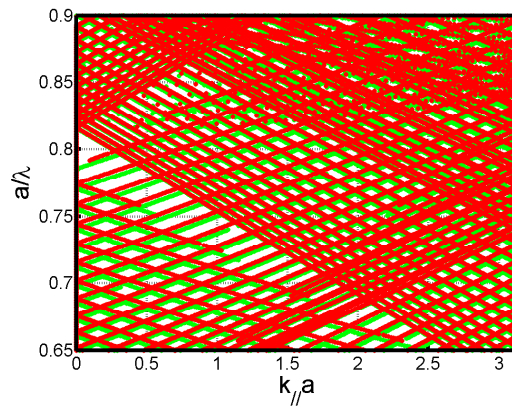


FIGURE 5.8 – Diagramme de bande théorique de la structure dans l’hypothèse d’une faible modulation de l’indice calculé par la méthode de repliement des bandes des modes guidés dans la PZB. La couche de *GaN* a une épaisseur de $2950nm$ et la période du réseau carré est égale à $345.7nm$. Le substrat est du saphir et le superstrat de l’air.

été extraits car ils sont confinés dans le *GaN* massif et ils ont donc une faible interaction avec le réseau situé en surface ; d’autre part la couche active, située à environ $250nm$ sous la surface se couple peut être peu à ces modes. Seuls les modes allant de 12 à 18 correspondant aux résonances les plus intenses, ont été représentés sur la figure 5.9(b).

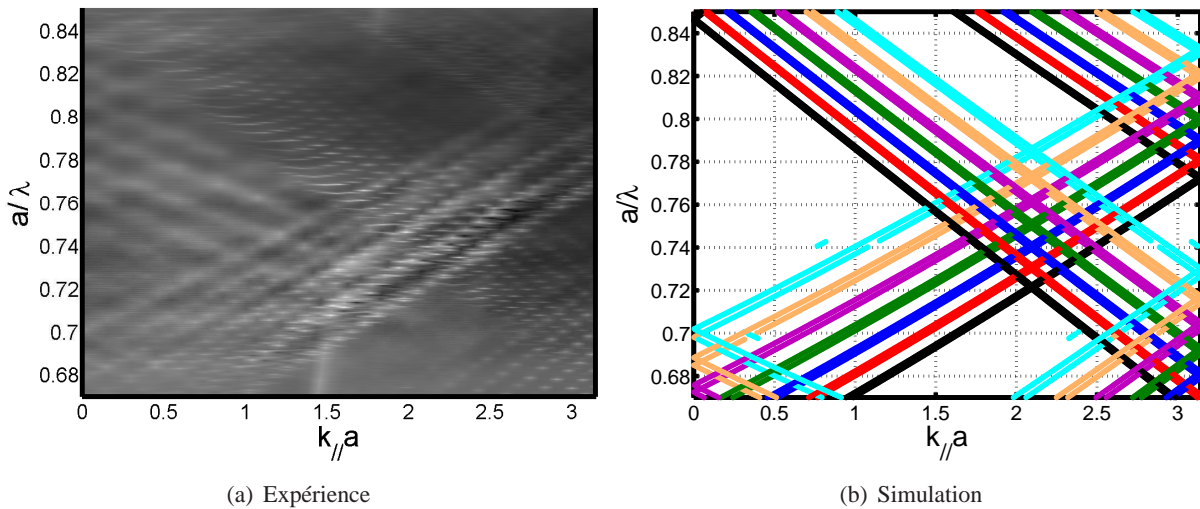


FIGURE 5.9 – Diagramme de bande expérimental et calculé d’un réseau gravé avec un pas de $345.7nm$ dans la direction ΓM . Les modes TE (resp. TM) sont représentés par des croix (resp. des étoiles). Seuls les modes les plus intenses allant de 12 à 18 sont représentés. Le mode 12 est noir, 13 en rouge, 14 en bleu, 15 en vert, 16 en violet, 17 en orange et 18 en turquoise.

Ainsi le cristal photonique permet *a priori* de renforcer le rendement d’extraction vers l’air et, au contraire des couches rugosifiées, de structurer le champ lointain.

5.2.1.3 Applications pour les LEDs actuelles

La croissance du GaN sur un substrat de saphir impose la présence d'un buffer de GaN d'épaisseur importante avant la réalisation de l'hétérostructure. Comme il a été vu précédemment, le nombre de modes guidés dans une telle structure est important. Le cristal photonique réalisé après la croissance en surface de l'échantillon n'interagit qu'avec un nombre restreint de ces modes guidés. Par ailleurs les propriétés d'extraction sont différentes pour chacun des modes. Trois grands problèmes se posent alors :

- ▷ comment extraire la lumière guidée quelque soit sa direction de propagation dans le cristal photonique ?
- ▷ comment coupler ces modes de surface avec le puits quantique ?
- ▷ comment optimiser la structure étant donné le nombre important de modes ?

Dans le cas d'une structuration peu profonde, c'est la problématique de l'omnidirectionnalité qui est résolue par le choix adéquat de la forme de la cellule de base du cristal photonique. Nous verrons dans la partie suivante sur la gravure profonde, les solutions aux problèmes liés à l'épaisseur.

Un réseau de fentes ne peut pas être omnidirectionnel. Un réseau bi-dimensionnel augmente le nombre de directions de vecteurs d'onde diffractés. Dans ce sens un réseau triangulaire sera préférable à un réseau carré.

Pour obtenir une structure omnidirectionnelle, le pas du réseau peut être augmenté ce qui implique d'utiliser des ordres du réseau plus grands.

Malheureusement l'utilisation des ordres supérieurs a pour conséquence d'augmenter la diffraction de la lumière vers le substrat qui est d'indice plus élevé que le superstrat. Par ailleurs l'augmentation de la valeur de la période entraîne une augmentation de la longueur caractéristique d'extraction qui est un paramètre important dans le design des réseaux (cf 5.3.2).

Des cellules de base du réseau plus complexe permettent de supprimer la diffraction par les premiers ordres. Les conclusions précédentes doivent donc être reconsidérées : la meilleure cellule de base est celle qui permet d'avoir une extraction des modes guidés quelque soit la direction de propagation de la lumière dans la couche. Le pavage d'Archimède A7 (David et al., 2001) permet d'obtenir des structures omnidirectionnelles.

En conclusion dans le régime de la faible modulation de l'indice, le cristal photonique se comporte comme un réseau de diffraction qui peut être omnidirectionnel, et ne modifie pratiquement pas l'indice effectif des modes. Malheureusement pour l'extraction de lumière, les modes guidés qui se couplent à la source ne sont pas tous extraits par le cristal photonique.

L'impact de l'introduction d'un réseau périodique dans une structure peut être plus important qu'un simple repliement de bandes. De plus l'approche présentée précédemment n'est valide que dans le régime de la faible modulation de l'indice, c'est à dire si l'épaisseur de la couche non structurée est suffisamment épaisse et que la différence d'indice entre les deux milieux est faible ou que le facteur de remplissage est proche de 0 (pas de trous). Le facteur de remplissage f correspond à la surface occupée par les trous ou par les nanofils par rapport à la surface totale. Pour un réseau triangulaire comportant des trous ou des fils de rayon R : $f = 2\pi R^2 / \sqrt{3}a^2$.

En dehors de ce régime, il faut en réalité ré-écrire et résoudre les équations de Maxwell dans une base périodique, c'est le régime de modulation forte de l'indice. L'impact de ce type de couplage sur les courbes de dispersion va être présenté dans la partie suivante. Elle se résume en deux points, l'augmentation de l'efficacité de diffraction et la modification de l'indice effectif des modes de Bloch.

5.2.2 Structuration profonde

Lorsqu'on prend en compte la présence du réseau pour déterminer les modes de Bloch du système, on obtient des courbes de dispersion différentes de celles de la partie 5.2.1. La méthode de calcul est expliquée dans la partie 5.3.2. Reprenons la structure précédemment étudiée mais avec un facteur de remplissage des trous d'air de $f = 0.3$ et une profondeur de gravure de $0.2a$. La maille est toujours une maille triangulaire et l'épaisseur totale vaut $0.5a$. Le diagramme de bande du mode de Bloch fondamental TE est présenté sur la figure 5.10 pour la direction ΓM .

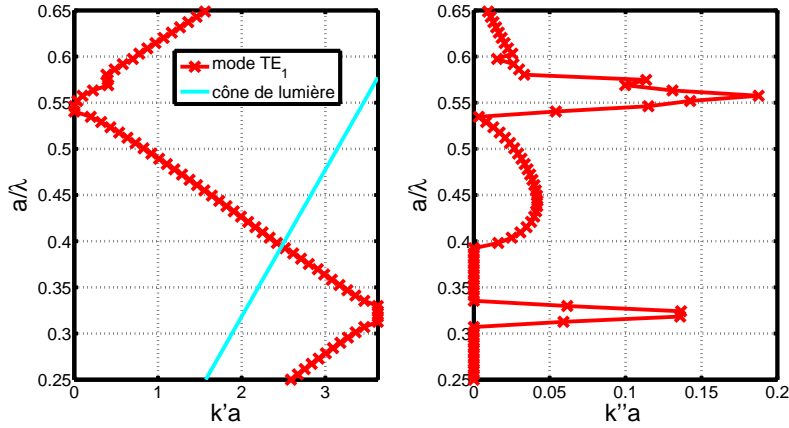


FIGURE 5.10 – Diagramme de bande complexe du mode fondamental TE dans la direction ΓM . La structure est entourée d'air, elle a une profondeur de gravure de $0.2a$ sur une épaisseur totale de $0.5a$ et un facteur de remplissage des trous d'air de $f = 0.3$. La partie réelle (resp. imaginaire) du vecteur d'onde planaire ($k_{||} = k' + ik''$) est présentée sur la droite (resp. la gauche)

Le mode fondamental TE n'est plus strictement guidé à partir de $a/\lambda = 0.4$. La partie imaginaire du vecteur d'onde de ce mode est représenté sur le graphe de droite de la figure 5.10. Le passage au dessus du cône de lumière coïncide avec l'apparition d'une partie imaginaire non nulle correspondant aux pertes vers l'air.

A partir d'une certaine fréquence ($a/\lambda = 0.58$ pour la direction ΓM d'un réseau triangulaire), tous les modes de Bloch sont au dessus du cône de lumière permettant ainsi d'atteindre de grands rendements d'extraction (Fan et al., 1997).

Deux différences majeures sont apparues par rapport au cas du couplage avec une faible modulation de l'indice :

- ▷ pour certaines fréquences réduites, la partie réelle du mode de Bloch est nulle et la partie imaginaire est non nulle, c'est une bande interdite,
- ▷ la courbure des bandes est différente de celle de la figure 5.1(b).

Ces phénomènes physiques vont maintenant être détaillés afin d'évaluer le potentiel des cristaux photoniques pour les LEDs.

5.2.2.1 La bande interdite

Une bande interdite se produit dès lors que le vecteur d'onde planaire arrive en bord de zone de Brillouin, par exemple en Γ ou en M sur la figure 5.10. Lorsqu'on résout les équations de Maxwell en ces points particuliers, on trouve qu'au lieu d'avoir une fréquence unique, on obtient deux valeurs de fréquences solutions différentes pour un même $k_{||}$ donné : les courbes de dispersion se séparent pour faire place à une bande interdite. La largeur de la bande sera d'autant plus importante que la modulation de l'indice est forte. La lumière générée à une fréquence de la bande interdite ne peut pas se propager dans la couche dans la direction correspondante à la bande interdite d'où la composante nulle pour la partie réelle du vecteur d'onde plan et la partie imaginaire non nulle. Un phénomène analogue se produit dans les miroirs de Bragg qui peuvent être vus comme un cristal photonique à une dimension.

Par ailleurs une bande interdite provoque une inhibition de l'émission dans le plan au prix d'une réduction de la durée de vie radiative.

L'utilisation des bandes interdites a été envisagé d'un point de vue théorique dans le cas des LED profondément gravées. L'idée est de supprimer l'émission de la lumière guidée afin d'avoir une émission spontanée uniquement couplée à la lumière rayonnée. Une bande interdite dans toutes les directions a déjà été envisagée, et des rendements d'extraction proches de 100% peuvent être obtenus en théorie (Fan et al., 1997; Lee et al., 2000; Yablonovitch, 1987).

Néanmoins la suppression de l'émission spontanée sous la forme de lumière guidée a pour conséquence d'augmenter la durée de vie radiative (Fujita et al., 2005; Noda et al., 2007). Le rendement quantique interne est ainsi dégradé (Lee et al., 2000). Cette technique n'est probablement pas la plus adaptée pour les LEDs à base de nitrure pour lesquelles les recombinaisons non-radiatives sont importantes ($\eta_{int} = 60\%$ en 2007, cf partie 2.2.2).

Par ailleurs la réalisation d'une structure ayant une bande interdite omnidirectionnelle peut être difficile en raison du faible indice du *GaN*.

5.2.2.2 Le bord de bande

La modification de la courbure de bande est un comportement intéressant pour différents domaines de la physique notamment lorsque la relation de dispersion est presque horizontale, on parle alors de bandes plates. Dans ce cas, la vitesse de groupe de la lumière qui est proportionnelle à la pente de la bande est proche de 0, ce qui a pour conséquence de ralentir la lumière, c'est le phénomène de lumière lente ("slow light" en anglais) (Krauss, 2008). Les bandes plates se situent généralement en bord de bande interdite.

L'émission spontanée se produit lorsqu'un émetteur se désexcite en émettant un photon dans un mode optique qui n'est pas occupé par d'autres photons. Le taux de transition est déterminé notamment par la densité de modes. La modification de la courbure des bandes par un cristal photonique a un impact sur l'émission. En effet le nombre de vecteurs d'onde possibles pour une longueur d'onde donnée est modifié, ce qui change la densité de modes. Le facteur de Purcell peut être ainsi renforcé (Boroditsky et al., 1999) grâce aux cristaux photoniques. Le renforcement ou l'atténuation vont en fait dépendre de la modification de la courbure des bandes.

Les bandes plates peuvent également être utilisées pour, au contraire des bandes interdites, favoriser des résonances sur des modes à pertes.

5.2.2.3 Approches récentes dans les LEDs actuelles

Afin de répondre au problème lié à la forte épaisseur du *GaN*, différentes solutions ont été envisagées récemment. Une première possibilité est de placer une fine couche d'*AlGaN* avant le puits quantique. Ce matériau ayant un indice plus faible que celui du *GaN*, crée ainsi une barrière optique entre les puits et la couche tampon de *GaN*. Ceux-ci émettent de la lumière principalement sur des modes de surface qui interagissent fortement avec le cristal photonique également en surface (Matioli et al., 2010b). La difficulté de cette méthode vient de la différence de paramètre de maille entre les deux matériaux, qui provoque des dislocations dans la structure, détériore la prise de contact et diminue le temps de vie non radiatif.

Une approche similaire consiste à enterrer le cristal photonique (David et al., 2008; Matioli et al., 2010a). Un inconvénient à cette technique est la fabrication du cristal enterré qui peut se révéler un véritable défi.

Une autre technique de réalisation des LEDs à cristaux photoniques est de structurer profondément la couche active, au delà des puits quantiques (Keller et al., 2006). La structuration profonde renforce l'extraction et modifie le facteur de Purcell de la source. Malheureusement ce type de réalisation à partir de structures planaires a pour conséquence d'augmenter la surface de recombinaison des paires électrons-trous ce qui augmente les taux de recombinaison non radiative.

Une dernière approche consiste à réaliser une LED d'épaisseur très fine par un process laser lift-off (Wierer et al., 2009). Un rendement d'extraction de 73% a pu ainsi être mesuré. Malheureusement la technique de fabrication est plus compliquée que les LEDs standards *GaN* qui utilisent également la méthode de report de

substrat. La présence de métal à proximité de la couche active peut également engendrer de nombreuses pertes.

L'utilisation de structures périodiques a été introduit dans le cas de LED planaires gravées. Leur efficacité est encore limitée par la faible profondeur de gravure devant l'épaisseur des couches épitaxiées. Les LEDs à nanofils organisés pourraient permettre d'exacerber les effets optiques déjà observés sans contre partie *a priori* sur le rendement quantique interne. Comme il a été vu dans l'introduction une réalisation de structures à nanofils organisés directement pendant la croissance depuis le substrat ou la croissance des fils à l'interface entre la couche planaire contenant l'émetteur et le superstrat sont des solutions envisageables.

Par ailleurs une procédure systématique de design n'existe pas. Le développement d'outils adéquat est donc nécessaire pour pouvoir appréhender les propriétés d'une structure à base de nanofils organisés. Les modèles mis en place au cours de cette thèse vont être présentés et illustrés dans la partie suivante.

5.3 Les outils mis en place

Dans le but d'un design d'une structure à base de nanofils organisés, il est important de connaître pour un cristal photonique donné si les modes guidés présents sont des modes à pertes et avec quelle efficacité ils sont extraits de la structure. De plus il faut déterminer les propriétés de la source dans le cristal afin de répondre à différentes questions :

- ▷ comment la source se couple t'elle aux différents modes guidés ?
- ▷ quelle est l'efficacité d'extraction du réseau en fonction de la géométrie des fils ?
- ▷ quel facteur de Purcell peut on attendre de la structure ?

Un code de RCWA permettant de calculer la réflectivité et la transmission d'une onde plane sur un multicouche avec des couches périodiques ou non était disponible dans mon laboratoire. Ce code m'a servi de base aux différents programmes que j'ai re-développé à partir de la littérature. Mon travail s'est fortement inspiré du travail de thèse d'Aurélien David. Par conséquent les notations utilisées dans cette thèse seront les mêmes que dans (David, 2006).

Le principe de la RCWA va maintenant être rappelé avant de présenter les deux outils permettant de répondre aux questions précédentes.

5.3.1 RCWA

5.3.1.1 Principe

La méthode appelée Rigorous Coupled Wave Analysis (RCWA) ou Fourier Modal Method (FMM) est particulièrement adaptée à l'étude des structures contenant des objets périodiques dans certaines directions et dont les dimensions sont de l'ordre de la longueur d'onde. À la base, la méthode a été développée pour l'étude de réseaux excités par une onde plane à l'extérieur de la structure.

La structure à étudier est divisée en sous couches suivant une direction particulière z pour laquelle au sein de chaque sous couche, l'indice est constant suivant z . En revanche l'indice peut varier dans les directions x et y .

Le principe de la méthode est de déterminer les modes propres k_z de chacune des couches. La détermination des valeurs des k_z est possible en résolvant un problème aux valeurs propres issu des équations de Maxwell écrites dans un milieu périodique.

Le champ total est défini pour chaque couche d'après le théorème de Floquet-Bloch, dans une base du même nom qui une base de Fourier avec un terme de phase ($e^{iG \cdot r + ik_{\parallel} \cdot r}$). Par exemple le champ électrique s'écrit :

$$E_{\parallel} = \left(\sum_G [E_{\parallel}]_G e^{iG \cdot r} \right) e^{ik_{\parallel} r} \quad (5.1)$$

Des matrices de passage permettent de passer de la base de Floquet à la base modale d'ondes planes en $e^{ik_z z}$.

Il faut ensuite déterminer les composantes du champ dans chacune des bases modales. Ces coordonnées sont représentées sous la forme d'un vecteur noté A dans la base modale. Les conditions de continuité aux interfaces qui définissent le couplage entre les champs des différentes couches, conduisent à des équations linéaires qui font intervenir les "coordonnées" du champ total. Ces équations peuvent être représentées sous une forme matricielle, ce sont les matrices S (scattering matrix). Enfin à partir de ces matrices et des conditions d'excitation, le champ total final dans toute la structure peut être déterminé.

La taille de la base de Fourier est un paramètre de convergence important dont il faut tenir compte.

Définissons maintenant plus en détails certains formalismes utiles pour la compréhension des parties 5.3.2 et 5.3.3.

5.3.1.2 Les matrices S

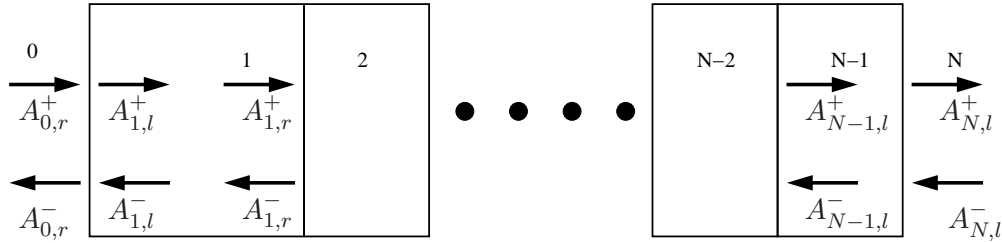


FIGURE 5.11 – Notations RCWA d'un multicouche comportant $N+1$ sous-couches. Les deux couches extrêmes sont semi-infinies.

Soit N_G le nombre total d'harmoniques. Le formalisme des couches est présenté sur la figure 5.11. La structure est composée de $N+1$ couches caractérisées par une épaisseur et des paramètres optiques liés à l'indice. Les couches extrêmes sont considérées comme semi-infinies.

Dans chaque couche les champs sont décomposés dans une base d'onde plane de dimension N_G . Le vecteur A représente l'amplitude des ondes planes se propageant suivant l'axe z dans la base modale. L'indice $+$ (resp. $-$) fera référence à des ondes se propageant dans le sens des z croissants (resp. décroissants). L'indice r (resp. l) désigne le vecteur A se situant à l'interface droite de la couche (resp. l'interface gauche de la couche). Par exemple un vecteur $A_{j,l}^+$ représente l'amplitude des ondes planes dans la couche j se propageant suivant $z+$ à l'interface entre les couches j et $j-1$.

Les matrices S permettent de relier les champs entrants dans la structure aux champs sortants :

$$\begin{bmatrix} A_{N,l}^+ \\ A_{0,r}^- \end{bmatrix} = S \begin{bmatrix} A_{0,r}^+ \\ A_{N,l}^- \end{bmatrix} \quad (5.2)$$

ou

$$A_{out} = S A_{in} \quad (5.3)$$

Le détail du calcul de la matrice S est bien documenté dans la littérature. On se référera à la publication de Whittaker par exemple (Whittaker and Culshaw, 1999).

5.3.1.3 Relation de passage entre la base modale et la base de Floquet

Dans chaque couche, il existe une relation de passage matricielle entre A dans la base modale et $E_{||}$ dans la base de Floquet :

$$E_{||} = \begin{bmatrix} E_x(z) \\ E_y(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \varepsilon & \varepsilon \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A^+(z) \\ A^-(z) \end{bmatrix} \quad (5.4)$$

les colonnes de ε sont les composantes des vecteurs propres dans la base de Floquet. A représente donc la projection du champ dans la base modale.

De même pour le champ magnétique :

$$H_{\parallel} = \begin{bmatrix} H_x(z) \\ H_y(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1}{\omega} C \varepsilon K & -\frac{1}{\omega} C \varepsilon K \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A^+(z) \\ A^-(z) \end{bmatrix} \quad (5.5)$$

avec K une matrice diagonale dont les éléments correspondent aux valeurs propres. Par convention la partie imaginaire des valeurs propres sera choisie positive de manière à ne pas faire diverger les champs. C est une matrice dont les éléments dépendent des permittivités, des perméabilités, de k_{\parallel} et de la longueur d'onde λ_0 (cf (David, 2006) équation (5.40)).

Soit F_j la matrice de passage de l'amplitude des ondes planes dans la couche j , A_j , aux champs électromagnétiques :

$$F_j \begin{bmatrix} A_j^+ \\ A_j^- \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{\parallel} \\ H_{\parallel} \end{bmatrix} \quad (5.6)$$

Les conditions de continuité sur les composantes tangentielles de E_{\parallel} et H_{\parallel} et les lois de propagation d'une onde plane dans une couche permettent de définir S_j qui relie $A_{0,r}$ à $A_{j,r}$.

Par itération, on obtient la matrice S de toute la structure.

5.3.2 Diagramme de bande

5.3.2.1 Énoncé et résolution du problème

Il existe plusieurs logiciels libres (Johnson and Joannopoulos, 2001) et commerciaux qui permettent de tracer le diagramme d'une structure multicouche avec des structurations périodiques. Cependant ces logiciels ne permettent d'avoir accès qu'à la partie réelle du diagramme ($Re(k_{\parallel})$) et ne considèrent pas toujours la structure comme étant de taille finie suivant z . Dans le cas d'une extraction par effet réseau, il est important d'évaluer la partie imaginaire de k_{\parallel} , k'' . En effet l'intensité de l'onde électromagnétique du mode de Bloch va décroître selon la loi :

$$I = |E|^2 \propto \exp(-2k''r) \quad (5.7)$$

Soit L_d la longueur caractéristique de décroissance associée, $L_d = 1/2k''$. Cette longueur traduit l'efficacité d'extraction de la lumière hors de la structure : si $L_d \sim \lambda$ la lumière est extraite très rapidement, si $L_d \gg \lambda$, la lumière est extraite très lentement. Dans ce dernier cas, les phénomènes d'absorption dans la couche active risquent de fortement limiter l'extraction par le réseau. Il faudra donc comparer L_d aux longueurs caractéristiques d'absorption de la structure.

Pour obtenir le diagramme de bande complexe, j'ai utilisé une des techniques de la thèse (David, 2006) liée au calcul RCWA. Les modes de Bloch représentés sur le diagramme de bande sont les modes propres de la structure, cela signifie que ces modes existent sans aucune excitation extérieure. Lorsqu'on traduit cette propriété sous la forme d'une équation de RCWA, on obtient d'après l'équation 5.3 :

$$S^{-1} A_{out} = A_{in} = 0 \quad (5.8)$$

Pour que cette équation ait une solution non nulle, il est nécessaire que le déterminant de $S^{-1} = R$ soit nul et il faut rechercher les pôles de la matrice S^{-1} . S dépend bien sûr de la structure mais également de la pulsation ω et de k_{\parallel} . J'ai choisi dans mon approche du problème, de fixer la pulsation ω et de chercher le k_{\parallel} solution de l'équation 5.8.

La recherche de pôles dans le plan complexe est un problème difficile. J'ai choisi la même méthode qu'Aurélien David dans sa thèse, c'est une méthode itérative à partir d'un point de départ. Cette méthode pose problème dès lors que la structure devient multimode, il faut en effet s'assurer qu'il ne manque aucun mode parmi les solutions.

La méthode est assez rapide à mettre en place dès lors que le code permettant de calculer les matrices S est établi. Soit $k_{||}^0$ la valeur solution. L'équation 5.8 écrit en un point $k_{||}$ tel que $k_{||}^0 = k_{||} + \delta k$ est :

$$R(k_{||} + \delta k)A_{out} = 0 \quad (5.9)$$

Un développement limité de cette équation en $k_{||}$ donne la relation :

$$R(k_{||})A_{out} + \frac{\partial R(k_{||})}{\partial k_{||}}\delta k A_{out} = 0 \quad (5.10)$$

En ré-écrivant cette équation, on se ramène à un problème aux valeurs propres :

$$\delta k A_{out} = - \left(\frac{\partial R(k_{||})}{\partial k_{||}} \right)^{-1} R(k_{||})A_{out} \quad (5.11)$$

La plus petite des valeurs propres donne une correction δk à apporter sur la valeur de $k_{||}$ pour converger vers $k_{||}^0$.

Pour valider le code, les différents diagrammes de bandes présentés dans le chapitre 3 de la thèse d'A. David ont été reproduits aussi bien pour les réseaux de fentes que les réseaux de trous ou de fils.

5.3.2.2 Illustration

Il existe deux possibilités d'organisation des LEDs à nanofils organisés. Pour les LEDs GaN , la couche active sera ainsi structurée sur toute l'épaisseur de la couche, jusqu'au substrat de silicium ou de saphir. Au contraire les nanofils de ZnO peuvent avoir une couche tampon de ZnO d'épaisseur plus ou moins importante en raison de la base pyramidale des nanofils (cf. figure 2.24). Cette situation correspond également au cas où les fils sont placés à l'interface entre la structure planaire et le superstrat.

Modes de Bloch

Le design de l'extraction d'un mode de Bloch revient à rechercher les paramètres de la structure permettant d'obtenir la partie imaginaire du vecteur d'onde planaire k'' la plus grande afin d'avoir une longueur caractéristique d'extraction la plus petite possible. Un tel design n'est pas envisageable dès lors que le nombre de modes de Bloch est trop important car chaque mode guidé interagit différemment avec le cristal photonique.

Lorsque l'épaisseur de la couche active est faible devant la longueur d'onde, peu de modes sont présents. Ce cas de figure est également possible lorsque le facteur de remplissage d'un dispositif gravé sur toute la hauteur, est faible.

Pour réaliser ce type de structure de faible épaisseur, il est possible soit de faire croître des nanofils de petite taille ou de faible densité, soit de structurer une couche fine de ZnO . Il n'est pas possible de faire croître sur une épaisseur sub-longueur d'onde du GaN avec une bonne qualité cristalline sur les substrats actuels (SiC ou saphir).

La longueur caractéristique d'extraction doit être comparée aux longueurs caractéristiques d'absorption du puits quantique, des contacts métalliques... Par exemple la longueur d'absorption des puits quantiques d' $InGaN$ est de l'ordre de la centaine de μm (Matioli et al., 2010a). Le coefficient d'absorption de l'ITO vaut $k'' \sim 7e^2 mm^{-1}$ ce qui correspond à une longueur caractéristique de l'ordre de $714 nm$ (Liu et al., 2010).

Le cas simple d'un réseau de fentes puis d'un réseau carré de nanofils est illustré dans le paragraphe suivant. Le mode optimisé sera le mode fondamental TE_1 . Mon choix s'est porté sur ce mode plutôt que le mode TM_1 . En effet le mode TE_1 aura un maximum de champ à peu près au centre de la structure dans la dimension verticale¹ contrairement au mode TM qui est asymétrique. Par ailleurs le couplage entre un dipôle planaire électrique et un mode guidé sera *a priori* meilleur avec un mode TE dont la composante principale de

1. Le maximum de TE ne sera pas exactement au centre car la structure à optimiser n'est pas parfaitement symétrique.

champ électrique est planaire contrairement au mode TM.

Réseau de fentes

Les hétérostructures planaires de ZnO sont actuellement élaborées sur des substrats de ZnO ou de saphir. Un substrat de ZnO ne convient pas à l'utilisation des modes guidés pour extraire la lumière vers le substrat et le superstrat car ces modes ne peuvent pas exister ou uniquement sous la forme de quasi modes de Bloch (David et al., 2007a). La structure étudiée aura donc soit un substrat de saphir soit un substrat de SiO_2 afin de comprendre l'impact de l'indice du substrat sur l'extraction.

L'épaisseur de la couche est égale à $200nm$. Le design consiste à déterminer la profondeur d et la largeur l de la fente comme représenté sur le schéma de la figure 5.12. Le but est d'obtenir une longueur d'extraction

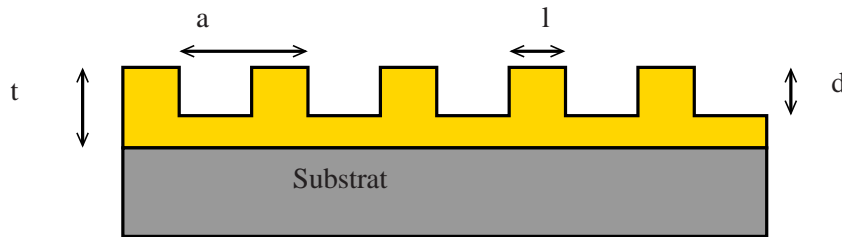


FIGURE 5.12 – Schéma d'un réseau de fentes sur une base non structurée. Le pas du réseau est noté a , sa largeur l et sa profondeur d .

L_d du mode fondamental TE la plus petite possible. Afin de réduire le nombre de paramètres à optimiser, la période est fixée à $150nm$. Pour une longueur d'onde d'émission à $380nm$, la valeur de a/λ est ainsi 0.4. La bande interdite intervenant en Γ se situe autour de $a/\lambda = 0.45$ pour le mode fondamental TE. Ainsi la période de $150nm$ a été choisie de manière à avoir un pas le plus grand possible pour être proche du point Γ et ainsi avoir une émission avec une directivité proche de l'axe vertical tout en restant dans la zone monomode ou "légèrement" multimode (2 modes TE) suivant la valeur de d .

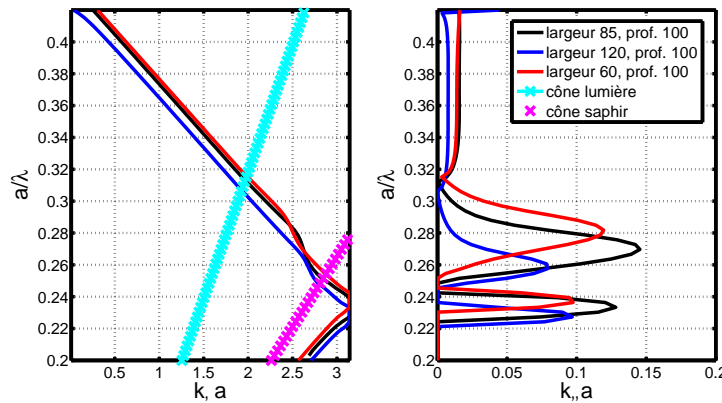


FIGURE 5.13 – Influence de la largeur des fentes sur le diagramme de bande de différents réseaux de fentes. La partie réelle du vecteur d'onde $k_{||}$ est à gauche, la partie imaginaire à droite. Seul le mode fondamental TE est représenté. Le substrat est du saphir. L'épaisseur totale des fentes et de la zone non gravée vaut $200nm$ pour une période de $150nm$ à la longueur d'onde $\lambda = 380nm$. La diminution de la largeur des fentes de diélectrique provoque une augmentation de la partie imaginaire du vecteur d'onde.

Afin de comprendre l'évolution des paramètres du design, différents diagrammes de bandes ont tout d'abord été calculés. Le résultat est présenté sur la figure 5.13 dans le cas de l'étude de l'influence de l . Quelque soit la valeur des paramètres, le diagramme de bande comporte une bande interdite autour de $a/\lambda = 0.24$. Ensuite la valeur de k'' est nulle jusqu'à ce que k' coupe le cône de lumière du saphir dans le sens des a/λ croissants. Juste après le cône de saphir, la valeur de k'' augmente à nouveau fortement jusqu'à un maximum puis diminue.

Un phénomène similaire intervient juste après le cône de lumière. D'après la figure 5.13, lorsqu'on diminue la largeur des fentes, la valeur de k'' est également augmentée.

On constate par ailleurs sur la figure 5.14 que pour une largeur de fente donnée, plus la profondeur de gravure est importante meilleure est l'extraction. Cette conclusion avait également été notée par A. David et al. dans (David et al., 2007b). Ainsi l'impact de la profondeur de gravure est plus important que celui de la largeur des fentes.

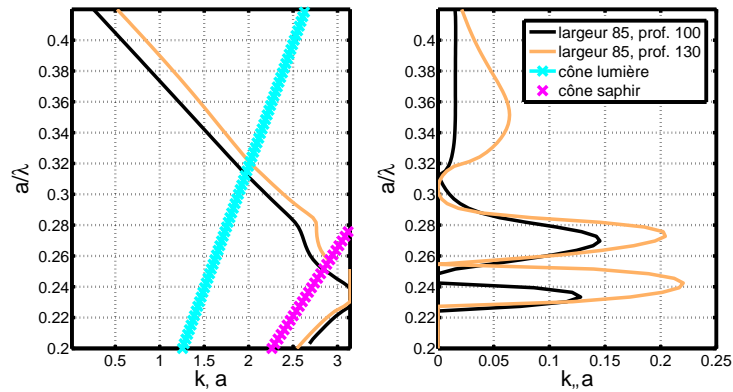


FIGURE 5.14 – Influence de la profondeur de gravure sur le diagramme de bande de différents réseaux de fentes. La partie réelle du vecteur d'onde k_{\parallel} est à gauche, la partie imaginaire à droite. Seul le mode fondamental TE est représenté. Le substrat est du saphir. L'épaisseur totale des fentes et de la zone non gravée vaut $200nm$ pour une période de $150nm$ à la longueur d'onde $\lambda = 380nm$. L'augmentation de la profondeur de gravure des fentes implique l'augmentation de la partie imaginaire du vecteur d'onde.

Plus la profondeur de gravure est importante plus l'indice effectif du mode guidé est faible car le mode se délocalise de la zone non gravée vers la zone gravée. Des conclusions similaires sont obtenues lorsqu'on diminue la largeur des fentes. L'indice effectif du mode pour $a/\lambda = 0.4$ est obtenu avec l'équation :

$$n_{eff} = (2\pi - k') \frac{\lambda}{2\pi a} \quad (5.12)$$

avec la valeur de k' prise dans le diagramme de bandes et correspondant à l'harmonique (-1) .

Il faut donc retenir que lorsque le mode se déplace de la zone non gravée vers la zone gravée, l'impact du réseau sur l'extraction est plus important d'où une diminution de la longueur d'extraction.

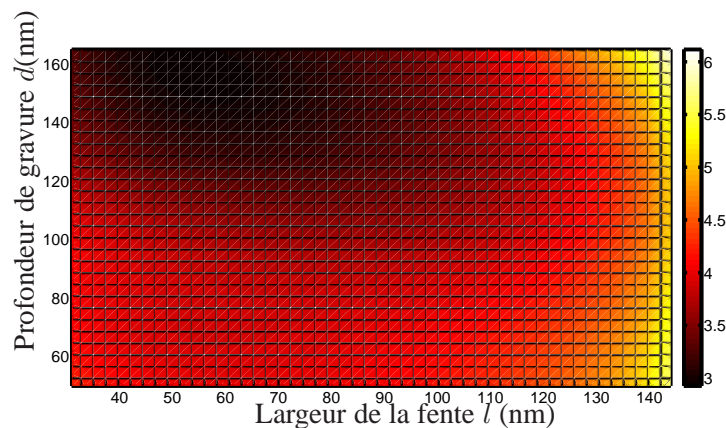


FIGURE 5.15 – Design d'un réseau de fentes de ZnO sur un substrat de saphir à la longueur d'onde $380nm$. La grandeur représentée en niveau de couleur est la longueur caractéristique d'extraction. L'échelle de couleur est en échelle logarithmique.

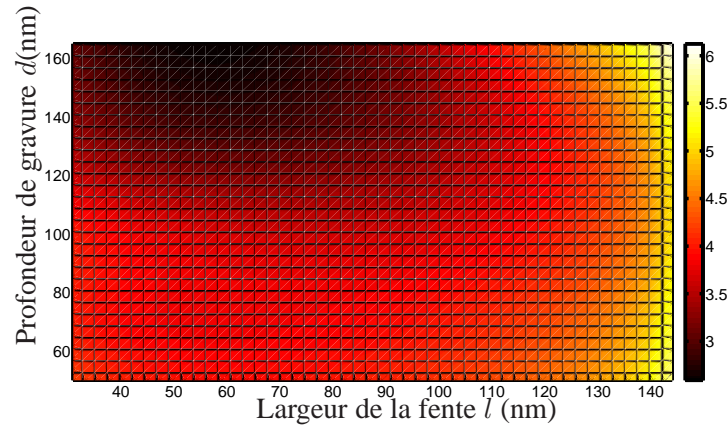


FIGURE 5.16 – Design d’un réseau de fentes de ZnO sur un substrat de SiO_2 à la longueur d’onde $380nm$. La grandeur représentée en niveau de couleur est la longueur caractéristique d’extraction. L’échelle de couleur est en échelle logarithmique. La plus petite longueur d’extraction est recherchée et correspond à une profondeur de gravure de $165nm$ avec une largeur de fente de $58nm$.

Substrat	Paramètres optimisés
Saphir	profondeur $157nm$ largeur $56nm$ $L_d = 843nm$
Silice	profondeur $165nm$ largeur $58nm$ $L_d = 390nm$

TABLE 5.1 – Résultats du design d’un réseau de fentes pour une longueur d’onde d’émission de $380nm$, une épaisseur totale de $200nm$ et un pas de $150nm$. La plus petite longueur d’extraction correspond à une profondeur de gravure de $157nm$ avec une largeur de fente de $56nm$.

Le résultat du design est présenté sur la figure 5.15 pour un substrat de saphir et sur la figure 5.16 pour un substrat de silice. Les valeurs sont résumées dans la table 5.1. On constate que la longueur d’extraction est beaucoup plus faible dans le cas d’un substrat de silice par rapport à un substrat de saphir. En effet la différence d’indice entre la silice et le ZnO est plus grande que celle avec le saphir. Ainsi les champs électromagnétiques sont plus confinés dans la couche active avec un substrat de silice, la diffraction par le réseau est donc plus efficace d’où une plus petite longueur d’extraction.

La valeur optimum de la profondeur du réseau de fentes sur un substrat de silice correspond à une borne du calcul. Une longueur d’extraction encore plus faible est donc à attendre pour un réseau plus profond. Cette remarque n’est pas valable pour un substrat de saphir.

Dans le design des fentes, la longueur d’extraction a été optimisée. La structure étant asymétrique (superstrat différent du substrat), le rapport entre l’extraction vers l’air et celle vers le substrat va également dépendre de la largeur des fentes et de la profondeur de gravure. L’optimum déterminé ne correspondra pas nécessairement à un maximum d’extraction, vers l’air par exemple.

Si l’on considère que la lumière émise vers le substrat est récupérable, alors le design précédent est bien adapté. En revanche si la lumière extraite dans le substrat n’est pas utilisable, la meilleure configuration du réseau de fentes correspondra à un maximum de lumière extraite vers le superstrat et un minimum vers le substrat. La longueur d’extraction associée sera probablement plus grande qu’avec le premier design.

En appliquant les formules données dans la thèse d’Aurélien David, j’ai pu ainsi calculer le ratio entre l’extraction vers le superstrat avec celle totale. Des vérifications simples ont été réalisées, une structure symétrique conduit à un ratio de 0.5, un substrat en métal parfait donne un ratio de 1 vers le superstrat, et en dessous du

cône de lumière, le ratio d'extraction vers l'air est nul.

Le résultat de l'optimisation est présenté sur la figure 5.17 pour un substrat de saphir. L'optimisation de l'extraction vers l'air correspond à une largeur de fente de $l = 109nm$ et une profondeur $d = 70nm$. Le ratio vaut alors 0.77. La longueur d'extraction a beaucoup augmenté car $L_{ext} = 14\mu m$.

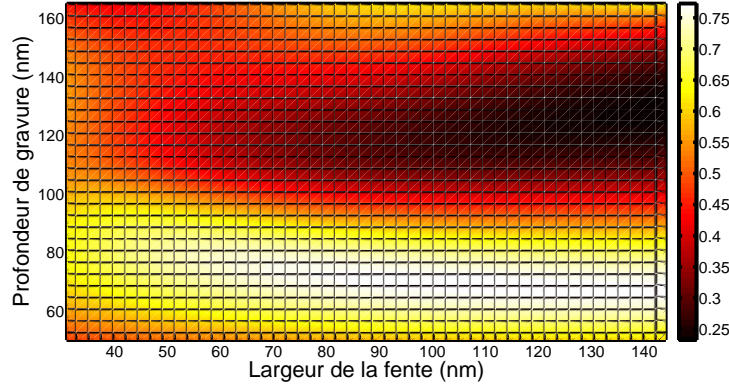


FIGURE 5.17 – Design de l'extraction vers l'air par rapport au substrat de saphir d'un réseau de fentes de ZnO à la longueur d'onde $380nm$. La grandeur représentée en niveau de couleur est le pourcentage de lumière extraite vers l'air par la lumière extraite totale. Une faible profondeur de gravure favorise l'extraction vers le superstrat d'air.

Ainsi les valeurs des longueurs caractéristiques d'extraction d'un réseau de fentes sont compétitives vis à vis de celles des processus d'absorption décrites précédemment. Cependant ce type de réseau de fentes n'est pas un bon extracteur puisqu'il permet d'extraire efficacement la lumière pour peu de directions de propagation.

Réseaux de fils

Soit un réseau carré de nanofils de pas $a = 150nm$ et de même épaisseur totale que le réseau de fentes précédent, soit $t = 200nm$. Ce type de réseau peut être fabriqué soit par gravure sélective soit par croissance. Les paramètres à optimiser sont le diamètre des fils et leur hauteur relative par rapport à t . Les substrats étudiés seront également le saphir et la silice.

Les figures 5.18 et 5.19 présentent le résultat du design de l'extraction du mode fondamental TE_1 dans la direction ΓM .

De manière similaire au réseau de fentes, on constate que les profondeurs de gravure permettant à la lumière de sortir rapidement, sont proches de l'épaisseur totale de la couche. En revanche contrairement aux fentes, les nanofils doivent avoir un diamètre important ($\sim 125nm$). De plus les longueurs d'extraction sont plus grandes ($\sim 3\mu m$).

Pour expliquer ces différences, il est intéressant de comparer l'amplitude de modulation de la permittivité pour les différents ordres d'un réseau de fentes et de fils. L'ordre permettant à la lumière guidée d'être diffractée vers l'extérieur est l'ordre -1 pour les deux types de réseau.

La série de Fourier de la fonction diélectrique d'un réseau de fentes dans la direction x s'écrit :

$$\epsilon(x) = \sum_{p=-\infty}^{\infty} \epsilon_p \exp(ipG_0x) \quad (5.13)$$

Par conséquent l'amplitude de cet ordre F_{-1} est :

$$F_{-1} = \frac{\epsilon_{-1}}{\sum_{p=-\infty}^{\infty} \epsilon_p} \quad (5.14)$$

Substrat	Paramètres optimisés
Saphir	profondeur $162nm$ diamètre $125nm$ $L_d = 3.66\mu m$
Silice	profondeur $166nm$ diamètre $125nm$ $L_d = 2.28\mu m$

TABLE 5.2 – Résultats du design d'un réseau de fils pour une longueur d'onde d'émission de $380nm$, une épaisseur totale de $200nm$ et un pas de $150nm$.

De même la série de Fourier de la fonction diélectrique d'un réseau de fils dans les direction x et y s'écrit :

$$\epsilon(x, y) = \sum_{p=-\infty}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \epsilon_{p,m} \exp(i(pG_0x + mG_0y)) \quad (5.15)$$

Par conséquent l'amplitude de l'ordre $F_{(0,-1)}$ (direction ΓM) est :

$$F_{(0,-1)} = \frac{\epsilon_{(0,-1)}}{\sum_{p=-\infty}^{\infty} \sum_{m=-\infty}^{\infty} \epsilon_{p,m}} \quad (5.16)$$

Un réseau de fentes de largeur $56nm$ a une amplitude sur l'ordre -1 de 0.21. L'amplitude de l'ordre $(0, -1)$ du réseau de fils de diamètre de $125nm$ est égale 0.17. Le réseau de fils a donc une amplitude plus faible que celle des fentes pour une direction de propagation considérée. Il est donc normal que la longueur d'extraction soit plus petite dans le cas des fentes. L'avantage du réseau carré est que le nombre de directions de propagation extraites est approximativement deux fois plus grand.

L'amplitude de modulation de la permittivité du cristal photonique ne permet pas d'expliquer à elle seule la valeur du diamètre optimale pour les fils ou celle de la largeur optimale des fentes. En effet l'optimum dans les deux cas ne correspond pas à la plus grande amplitude de modulation. Ces valeurs dépendent des propriétés du mode de Bloch dans toute la structure et non du cristal photonique seul. Il en est de même pour les valeurs de la hauteur des fils.

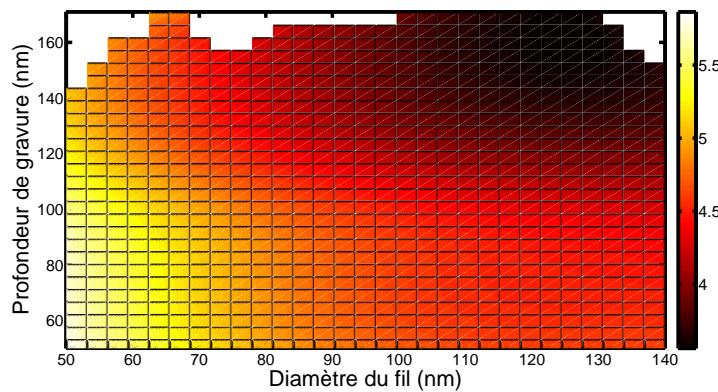


FIGURE 5.18 – Design d'un réseau à maille carré de fils de ZnO sur un substrat de saphir à la longueur d'onde $380nm$ dans la direction ΓM . La grandeur représentée en niveau de couleur est la longueur caractéristique d'extraction en échelle logarithmique. L'épaisseur totale de la couche vaut $200nm$, la période est égale à $150nm$. Il est intéressant d'avoir une hauteur de nanofils importante par rapport à l'épaisseur totale de la couche. Le diamètre des fils sera choisi autour de $125nm$.

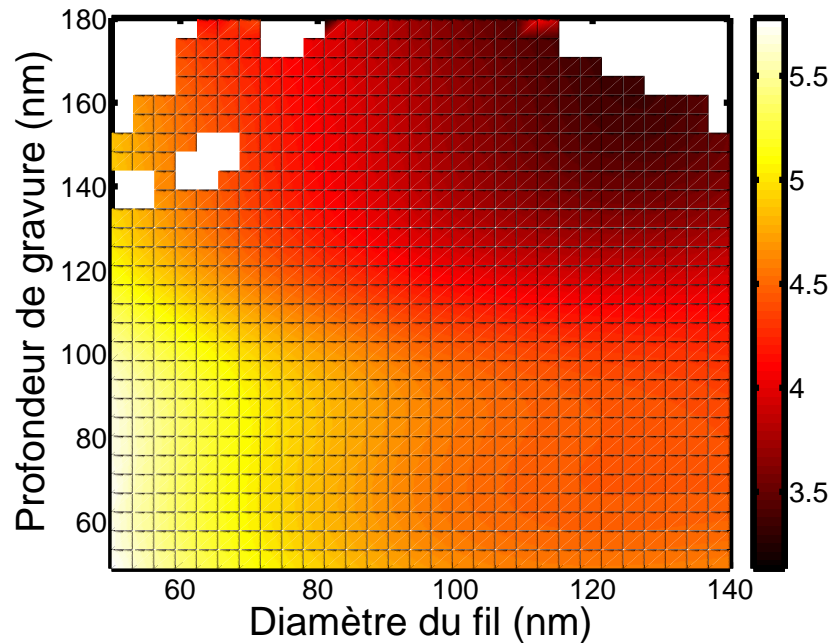


FIGURE 5.19 – Design d’un réseau de fils de ZnO sur un substrat de SiO_2 à la longueur d’onde $380nm$ dans la direction ΓM . La grandeur représentée en niveau de couleur est la longueur caractéristique d’extraction en échelle logarithmique. L’épaisseur totale de la couche vaut $200nm$, la période est égale à $150nm$. Il est intéressant d’avoir une hauteur de nanofils importante par rapport à l’épaisseur totale de la couche. Le diamètre des fils sera choisi autour de $125nm$.

Lors du passage d’un réseau de fentes à un réseau de nanofils, la fonction diélectrique est fortement modifiée. Par conséquent l’évolution du mode de Bloch est différente pour un réseau de fils dont l’optimum ne correspond pas au même facteur de remplissage. Dans le cas des fentes avec un substrat de saphir, une largeur de $56nm$ donne un facteur de remplissage de $f = 0.37$. Des fils de diamètre $125nm$ ont un facteur de remplissage différent : $f = 0.55$.

Un facteur de remplissage de 0.3 correspond à un diamètre de fils de $103nm$. Pour cette valeur de diamètre, la partie imaginaire du vecteur d’onde planaire est égale à $k'' = 0.012a$. Ce résultat est assez proche de l’optimum $k''_{max} = 0.02a$.

En revanche dans les deux cas (fentes et fils), l’optimum est obtenu pour k' le plus proche possible du cône de lumière. Malheureusement ce résultat signifie que la lumière extraite aura une direction proche de $\theta = 90^\circ$ (lumière rasante). Dans le cas d’une optimisation de la directivité de la structure, il sera préférable de choisir les paramètres permettant de rapprocher le mode de Bloch du point Γ au détriment de la longueur d’extraction. Les réseaux triangulaires montrent une évolution similaire.

En conclusion, le calcul du diagramme de bande est donc un outil intéressant pour le design d’un réseau. Par ailleurs un réseau de nanofils de faible épaisseur pourrait permettre d’extraire la lumière avec une longueur caractéristique d’extraction supérieure au micron. Il sera intéressant d’étudier par la suite des structures plus proches de la réalité en intégrant dans le calcul une couche d’ITO pour l’injection électrique, avant le superstrat par exemple.

5.3.3 Émission dipolaire

5.3.3.1 Résolution du problème

Comme il a été vu précédemment, la présence d’un cristal photonique autour de la source peut fortement modifier l’émission de celle-ci. Réfléchissons tout d’abord sur la technique de calcul à utiliser.

La FDTD permettrait d'obtenir les résultats sur le rendement d'extraction et le facteur de Purcell mais la fenêtre de simulation ne peut pas être limitée à la cellule de base du cristal photonique. En effet pour simuler l'émission spontanée dans un réseau, il faut calculer les champs émis par plusieurs dipôles incohérents et aléatoirement positionnés dans le plan de la couche émettrice, dans le cristal photonique complet. Le calcul sera donc long avec cette méthode. De plus les dipôles sont alors localisés.

La RCWA permet de résoudre le problème dans une base de Fourier plus adaptée à la physique d'une structure périodique. Le calcul classique de RCWA consiste à calculer les coefficients de réflexion et de transmission d'une onde plane sur la structure. L'introduction de la source à l'intérieur même de la structure modifie donc ce calcul. Cette modification a été traitée à de nombreuses reprises dans la littérature (Delbeke et al., 2002; Rigneault et al., 1999, 2000; Taniyama and Notomi, 2008; Whittaker and Culshaw, 1999). En revanche le détail de l'écriture du terme source est peu expliqué et surtout beaucoup plus compliqué lorsque l'émission correspond à l'émission spontanée d'un dipôle non périodique dans une structure périodique. Nous reviendrons par la suite sur ce problème.

Le calcul du rendement d'extraction et du facteur de Purcell est également réalisable avec cette seconde méthode.

Au cours de cette thèse, l'utilisation de la FTDT s'est révélée non réalisable avec le logiciel commercial à disposition. Le calcul par RCWA a été implémenté et les résultats ont été comparés avec ceux de la thèse d'A. David. Le détail du calcul va maintenant être présenté avant d'illustrer un exemple de résultat.

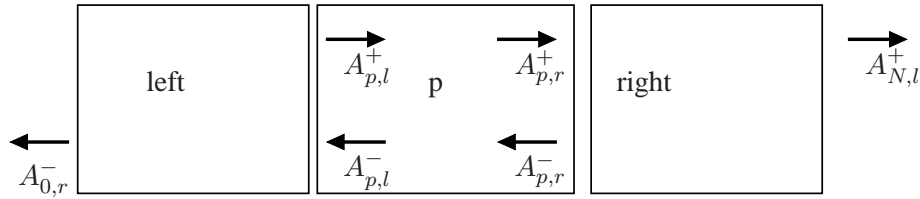


FIGURE 5.20 – Notation RCWA d'une structure ayant un émetteur dipolaire dans la couche p .

Soit p le numéro de la couche où se trouve le dipôle et z_s la distance entre le dipôle et le superstrat (fig. 5.20). La couche p sera supposée d'épaisseur nulle et d'indice n_s . Le dipôle introduit une perturbation électromagnétique, il faut donc déterminer les champs $A_{p,l}^+$, $A_{p,l}^-$, $A_{p,r}^+$ et $A_{p,r}^-$ qui satisfassent à la fois aux conditions aux limites et aux propriétés de l'émission dipolaire. Whittaker dans (Whittaker and Culshaw, 1999) établit à partir de l'écriture du vecteur densité de courant J que dans le cas d'un dipôle planaire :

$$E_{\parallel}(z_s^+) - E_{\parallel}(z_s^-) = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.17)$$

$$H_{\parallel}(z_s^+) - H_{\parallel}(z_s^-) = \begin{bmatrix} p_y \\ -p_x \end{bmatrix} \quad (5.18)$$

$$(5.19)$$

avec p_x , p_y et p_z les composantes de la transformée de Fourier de J . Respectivement dans le cas d'un dipôle vertical :

$$E_{\parallel}(z_s^+) - E_{\parallel}(z_s^-) = \begin{bmatrix} p_z \\ p_z \end{bmatrix} \quad (5.20)$$

$$H_{\parallel}(z_s^+) - H_{\parallel}(z_s^-) = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.21)$$

$$(5.22)$$

Ainsi dans le cas général :

$$\begin{bmatrix} E_{\parallel}(z_s^+) \\ H_{\parallel}(z_s^+) \end{bmatrix} - \begin{bmatrix} E_{\parallel}(z_s^-) \\ H_{\parallel}(z_s^-) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} p_z \\ p_z \\ p_y \\ -p_x \end{bmatrix} = \Delta \quad (5.23)$$

A partir de l'équation 5.6, la relation entre les champs autour du dipôle et Δ est :

$$F_p \begin{bmatrix} A_{p,r}^+ \\ A_{p,r}^- \end{bmatrix} - F_p \begin{bmatrix} A_{p,l}^+ \\ A_{p,l}^- \end{bmatrix} = \Delta \quad (5.24)$$

Afin de trouver les champs $A_{p,l}^-$ et $A_{p,r}^+$ qui correspondent à l'émission dipolaire dans la structure, il faut prendre en compte les conditions aux limites : il n'y a pas de champs incidents provenant de l'extérieur. Soient S^{left} et S^{right} les deux matrices correspondant aux sous-structures situées respectivement à gauche et à droite de la couche p ; les sous structures se terminent dans la couche d'indice n_s . Ces matrices ajoutent les équations suivantes au problème :

$$A_{p,l}^+ = S_{12}^{left} A_{p,l}^- \quad (5.25)$$

$$A_{0,r}^- = S_{22}^{left} A_{p,l}^- \quad (5.26)$$

$$A_{p,r}^+ = S_{21}^{right} A_{p,r}^+ \quad (5.27)$$

$$A_{N,l}^+ = S_{11}^{right} A_{p,r}^+ \quad (5.28)$$

$$(5.29)$$

On peut donc se ramener à une équation reliant la structure au dipôle :

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_p(1 + S_{21}^{right}) & -\varepsilon_p(1 + S_{12}^{left}) \\ \frac{1}{\omega} C_p \varepsilon_p K_p(-S_{21}^{right} + 1) & \frac{1}{\omega} C_p \varepsilon_p K_p(-S_{12}^{left} + 1) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{p,r}^+ \\ A_{p,l}^- \end{bmatrix} = \Delta \quad (5.30)$$

En résolvant cette équation, les champs au niveau des couches p , 0 et N sont parfaitement déterminés, les coefficients d'extraction peuvent donc être calculés tout comme le facteur de Purcell.

Toute la difficulté du problème est la manière d'écrire dans la base de Floquet, le terme source au travers des trois composantes $p = (p_x, p_y, p_z)$. Dans les chapitres 3 et 4, l'émission du puits quantique a été modélisée par l'émission d'un ensemble de sources ponctuelles aléatoirement disposées dans le plan du puits et émettant de manière incohérentes entre elles. Cette modélisation est bien adaptée aux puits d'*InGaN* dont les excitons sont localisés.

Dans ce chapitre, c'est le cas de figure opposé afin de pouvoir mettre en lumière les effets du réseau. La source est représentée sous la forme d'ondes planes de vecteurs d'onde k_{\parallel} différents et incohérents entre elles, l'émetteur est ainsi délocalisé dans le plan du puits quantique. Par conséquent, le calcul des champs émis doit être fait séparément pour chaque k_{\parallel} et les intensités doivent ensuite être sommées.

Ces remarques se traduisent au niveau de l'écriture de la source pour chaque k_{\parallel} par un unique terme non nul dans la base de Floquet :

$$p_x = \begin{bmatrix} 0 \\ \vdots \\ 0 \\ S_x \exp(-ik_{\parallel}(r - r_0)) \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.31)$$

avec r_0 la position horizontale de la source, le terme non nul est le fondamental. Les composantes de p_y et p_z sont similaires.

La valeur de r_0 n'a aucune influence sur le résultat puisque ce sont les intensités qui sont sommées et non les amplitudes.

L'influence du cristal photonique sur l'extraction sera visible directement au niveau des harmoniques. En effet la source ne se couple qu'au mode fondamental par conséquent le champ généré sur les harmoniques dans les différentes couches sera dû à la diffraction par le réseau ce qui rend cette écriture plus facile à interpréter par rapport à la seconde écriture.

Le but du calcul est d'établir le diagramme d'émission de la source, ainsi que le rendement d'extraction et le facteur de Purcell par conséquent l'émission est décrite en terme de puissance émise par unité d'angle solide et θ est l'angle par rapport à l'axe z vertical et ϕ l'angle dans le plan du réseau xy pour une direction donnée.

Ainsi l'intégrale sur k_{\parallel} de 0 à l'infini est maintenant une intégrale sur θ et ϕ avec θ entre 0 et π et ϕ entre 0 et 2π . En séparant l'émission à gauche et celle à droite, on obtient la formule pour la puissance de la source émise à droite :

$$\int_{\phi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \left(|E_{G=0,p,r}^+|^2 - |E_{G=0,p,r}^-|^2 \right) \sin \theta d\theta d\phi \quad (5.32)$$

Des équations similaires décrites dans (David, 2006) conduisent au rendement d'extraction et au facteur de Purcell total.

Sachant que l'émission est modélisée par des dipôles horizontaux délocalisés, l'écriture de (S_x, S_y, S_z) pour représenter un dipôle moyen planaire sera :

$$S_x = S_y = \cos \theta \sqrt{\frac{3}{4\pi}} \quad (5.33)$$

$$S_z = 0 \quad (5.34)$$

avec l'angle θ définit précédemment.

5.3.3.2 Résultats

La technique précédente permet d'obtenir les champs électromagnétiques dans la couche où se trouve la source mais également dans le superstrat et le substrat. À partir de ces champs, il est possible de calculer le facteur de Purcell d'une part et le rendement d'extraction d'autre part. Le diagramme d'émission au niveau de la source ainsi que celui émis à l'extérieur peuvent être tracés. L'information fournie par ces diagrammes est très utile pour comprendre le comportement de la lumière dans la structure.

Pour des structures non gravées ou gravées dans une dimension, la durée du calcul est comprise entre moins d'une seconde à quelques minutes. En revanche pour les réseaux gravés en deux dimensions, les temps de calcul sont vraiment très longs (plusieurs jours). Une optimisation du calcul permettrait sûrement de réduire cette durée mais le résultat sera néanmoins toujours long à obtenir. Ainsi l'utilisation de cette méthode n'est pas adaptée pour une optimisation du dessin de la LED.

La technique de calcul va maintenant être illustrée par trois séries d'exemples. Le premier vise à reproduire un résultat de la littérature sur une membrane tandis que les deux autres correspondent à des nanofils organisés.

Réseau de trous sur un substrat d'air

La figure 5.21 représente le diagramme d'émission calculé par RCWA d'un réseau de trous d'air de pas a pour $a/\lambda = 0.6$. Le résultat est semblable à celui d'A. David dans sa thèse (page 153). Les axes de la figure sont $k_x = k_{\parallel} \cos \varphi$ et $k_y = k_{\parallel} \sin \varphi$. Ils sont de plus normalisés par k_0 . La grandeur physique représentée est le logarithme décimal de l'intensité du champ électrique.

Le réseau de trous d'air modélisé a une épaisseur égale à a et un facteur de remplissage de 0.5. La structure est entourée d'air.

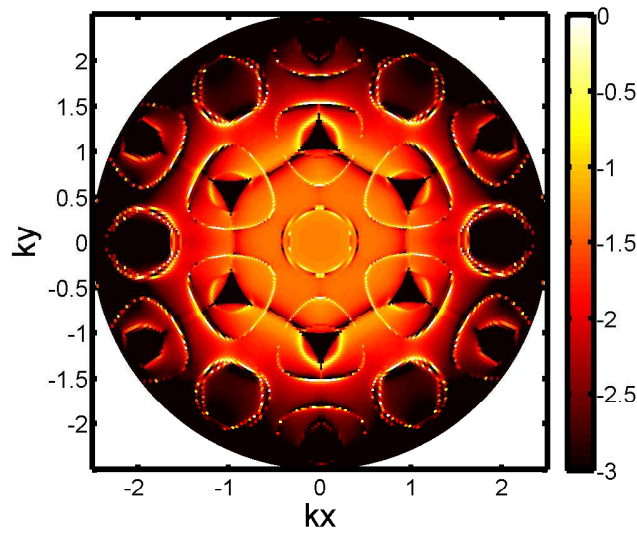


FIGURE 5.21 – Diagramme émission d'une source positionnée au centre d'un réseau triangulaire de trous sur toute l'épaisseur a de la couche et de facteur de remplissage $f = 0.5$. La grandeur observée correspond au logarithme décimal de l'intensité électrique. La longueur d'onde vérifie $a/\lambda = 0.6$. Le réseau est entouré d'air. L'indice du diélectrique vaut $n = 2.5$. La méthode de calcul utilisée est celle de la thèse (David, 2006).

Tous les diagrammes obtenus par cette méthode auront une allure similaire due à la symétrie et à la périodicité des nanofils. En chaque point du réseau réciproque, on trouve les modes propres comme représenté sur la figure 5.22. Ensuite les modes propres de même symétrie interagissant ensemble, on obtient au final au diagramme comme celui de la figure 5.21.

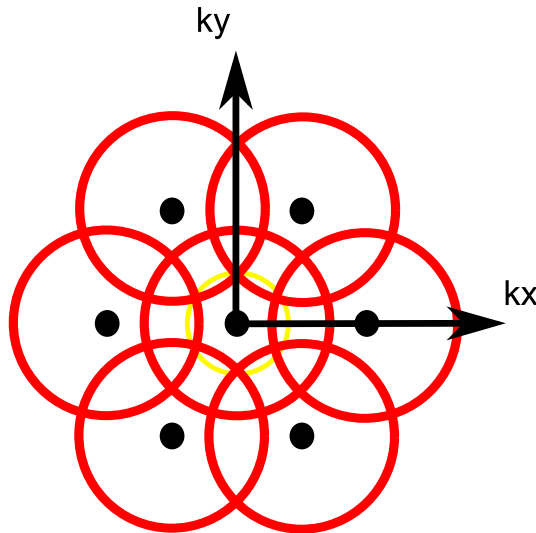


FIGURE 5.22 – Principe des cercles du diagramme d'émission. En noir, les points du réseau réciproque. Le cercle jaune représente le cône de lumière et les cercles rouges, l'indice effectif d'un mode de Bloch particulier.

En intégrant le résultat par unité d'angle solide ($\sin \theta d\theta d\phi$), le facteur de Purcell à partir du diagramme d'émission de la source et le rendement d'extraction (diagramme d'émission du superstrat) peuvent être calculés.

Les structures étudiées par la suite sont d'abord un réseau triangulaire de nanofils dans un superstrat et un substrat d'air, puis la même structure avec un substrat de saphir. Le premier cas utopique permet de

comprendre les phénomènes importants qui contrôlent le diagramme d'émission de la source dans la structure et de le comparer au cas de la membrane. Le second illustre un exemple plus proche de la réalité dans le cas de fils de ZnO .

Substrat d'air

La figure 5.23 représente le diagramme d'émission d'une structure rigoureusement équivalente à celle de la thèse d'A. David (page 153) à la différence que les trous d'air sont maintenant des fils et inversement la couche est maintenant une gaine d'air comme représenté sur la figure 5.24.

Le réseau a une maille triangulaire. L'épaisseur de la couche de fils entourés d'air vaut a et la fréquence réduite est égale à $a/\lambda = 0.6$. Le facteur de remplissage des fils vaut $f = 0.5$.

Pour comprendre la figure 5.23(a), il faut tout d'abord tracer le cercle centré sur l'origine et d'indice effectif correspondant à l'indice effectif du mode de Bloch $n_{eff} = 1.5$ (en blanc). Ensuite il faut dupliquer le cercle correspond à ce mode de Bloch aux points du réseau réciproque, ce qui fait apparaître des portions de cercle. La période intervenant dans le diagramme d'émission est la période normalisée par k_0 soit $G_0/k_0 = 2\pi\lambda/a\sqrt{3}$ pour un réseau triangulaire.

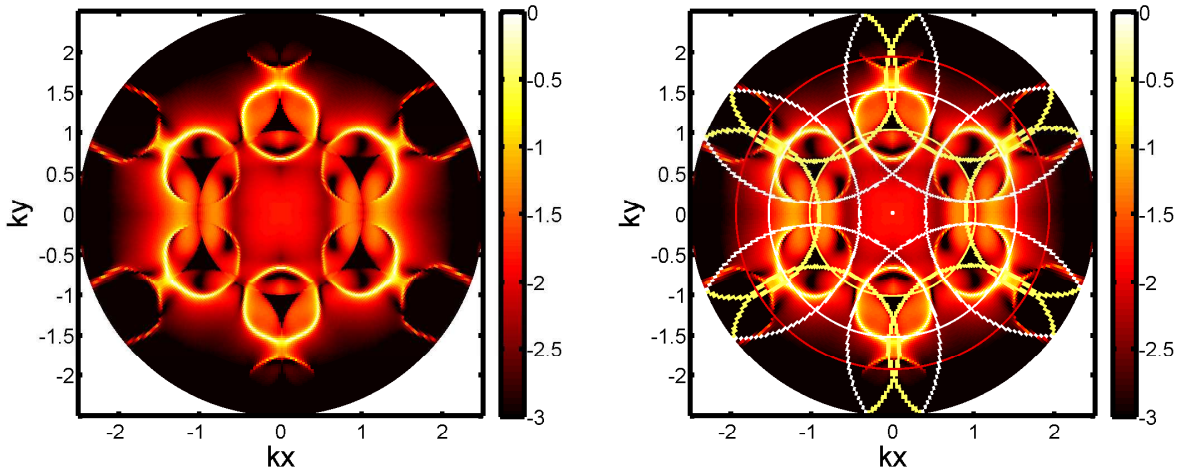


FIGURE 5.23 – Diagramme émission d'une source positionnée au centre d'un réseau triangulaire de fils d'épaisseur a , d'indice $n = 2.5$ et de facteur de remplissage $f = 0.5$. La grandeur observée correspond au logarithme décimal de l'intensité électrique. La longueur d'onde vérifie $a/\lambda = 0.6$. Le réseau est entouré d'air. Le cercle rouge correspond aux vecteurs d'onde planaires de valeur égale à l'indice moyen de la structure $n_{moy} = 1.9$. Le cercle jaune central représente le cône de lumière, les autres sont issus de la périodicité. Le cercle blanc fait référence à un mode d'indice effectif $n_{eff} = 1.5$.

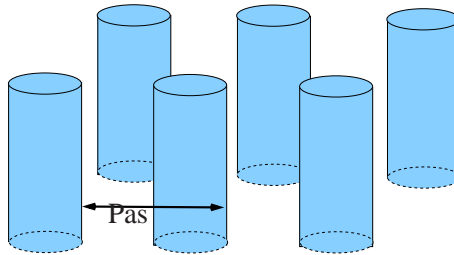


FIGURE 5.24 – Schéma d'un réseau de nanofil à maille triangulaire.

Le cône de lumière en jaune est représenté par l'ensemble des vecteurs d'onde planaire tels que $k_{||} < 1$. Le diagramme d'émission est différent de la figure 5.21 alors que le facteur de remplissage est toujours de $f = 0.5$. Néanmoins les remarques réalisées par A. David dans (David et al., 2007a) restent valables :

- ▷ le diagramme d'émission a une symétrie hexagonale,
- ▷ il y a peu d'émission au delà du cercle correspondant à l'indice moyen de la structure n_{moy} (rouge),
- ▷ la présence d'un (des) mode(s) de Bloch provoque des résonances parmi l'émission d'arrière plan sauf en présence d'une bande interdite.

La périodicité du cône de lumière provoque des points d'ombre dans le diagramme d'émission. Ses points pourraient être supprimés en rapprochant par exemple les cercles jaunes du centre, ce qui se traduit par la diminution de λ/a .

Le mode de Bloch d'indice effectif 1.5 et ses harmoniques sont très proches de l'isofréquence d'indice 1.5. Certains gaps apparaissent cependant, ce qui crée un mode discontinu pour certaines directions.

La figure 5.25 présente le diagramme d'émission de deux autres réseaux de même épaisseur et à la même fréquence que le précédent mais pour des facteurs de remplissage différents. De la même manière, il y a peu de lumière émise au delà de l'indice effectif correspondant à l'indice moyen de la couche de fils ($n_{moy}^2 = n_{fils}^2 f + 1 - f$ pour une gaine d'air).

Par ailleurs parmi les différents modes de Bloch présents, un mode en particulier semble se coupler efficacement à la source. Ensuite par diffraction, ce mode sort plus ou moins efficacement de la structure.

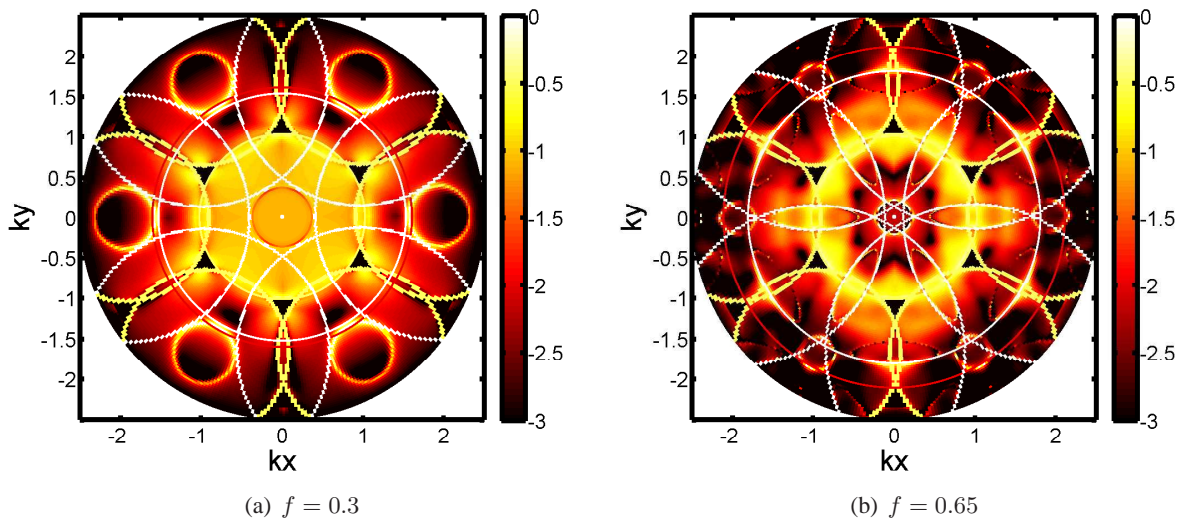


FIGURE 5.25 – Diagramme émission d'une source positionnée au centre d'un réseau triangulaire de fils d'épaisseur a , d'indice $n = 2.5$ pour différents diamètres de fils. La grandeur observée correspond au logarithme décimal de l'intensité électrique. La longueur d'onde vérifie $a/\lambda = 0.6$. Le réseau est entouré d'air. Le cercle rouge correspond à l'indice moyen de la structure $n_{moy} = 1.6$ (resp. $n_{moy} = 2.1$) pour des fils de facteur de remplissage $f = 0.3$ (resp. $f = 0.65$). Le cercle jaune central représente le cône de lumière, les autres sont issus de la périodicité. Le cercle blanc fait référence à un mode d'indice effectif $n_{eff} = 1.5$ (resp. $n_{eff} = 1.8$)

Le réseau de facteur de remplissage $f = 0.5$ n'a pas un bon rendement d'extraction ($\eta_{ext} = 0.17$) par rapport aux autres réseaux car le cône de lumière ne contient pas beaucoup de puissance. Contrairement à ce qu'on pourrait penser le réseau de facteur de remplissage $f = 0.65$ a le meilleur rendement d'extraction ($\eta_{ext} = 0.52$) car il a un maximum de puissance en bordure du cône de lumière ce qui est avantageux dans une intégration par unité d'angle solide.

Substrat de saphir

Lorsque le substrat d'air est remplacé par un autre en saphir, les propriétés des modes de Bloch sont modifiées. Par conséquent le diagramme d'émission est également modifié. La figure 5.26 présente le diagramme d'émission de la source vers le superstrat d'air pour une structure d'épaisseur a , de facteur de remplissage $f = 0.5$ à la longueur d'onde $a/\lambda = 0.6$.

Le rendement d'extraction total est amélioré par rapport à un substrat d'air car $\eta_{ext} = 0.24$ cependant l'extraction vers l'air n'est que de 3%, la majorité de la lumière part vers le substrat de saphir. En effet il n'y a pratiquement pas de lumière diffractée dans le cône de lumière. Par ailleurs la proportion de lumière sur les modes de Bloch est moins importante que dans le cas d'un substrat d'air.

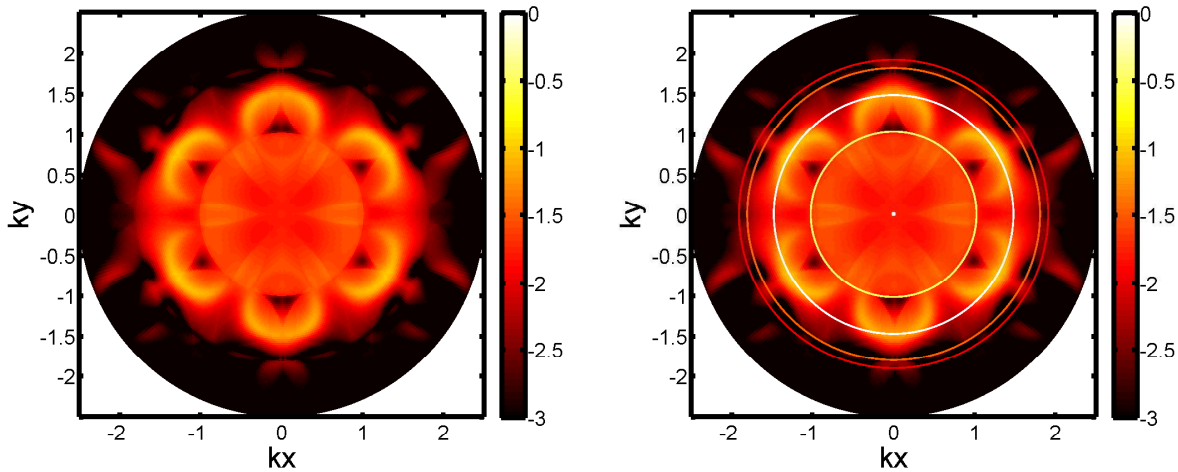


FIGURE 5.26 – Diagramme émission vers l'air d'une source positionnée au centre d'un réseau triangulaire de fils d'épaisseur a , d'indice $n = 2.5$ et de facteur de remplissage $f = 0.5$. La grandeur observée correspond au logarithme décimal de l'intensité électrique. Le superstrat est de l'air et le substrat du saphir. La longueur d'onde vérifie $a/\lambda = 0.6$. Le réseau est entouré d'air. Le cercle rouge correspond à l'indice moyen de la structure $n_{moy} = 1.9$. Le cercle jaune (resp. orange) représente le cône de lumière (resp. le cône de saphir). Le cercle blanc fait référence à un mode d'indice effectif $n_{eff} = 1.5$

L'optimisation de l'émission dans un cristal photonique est un problème difficile car les calculs sont très longs et une recherche paramétrique n'est pas envisageable. J. J. Wierer dans (Wierer et al., 2009) suggère d'ailleurs une étude expérimentale plutôt que théorique. Néanmoins l'étude du diagramme d'émission de la source dans le cristal photonique apporte beaucoup d'informations intéressantes pour comprendre les mécanismes intervenant dans le phénomène de l'émission spontanée. L'outil portant sur l'émission dipolaire va donc permettre de déterminer comment la source se couple aux modes guidés d'une part et quel est son facteur de Purcell et son rendement d'extraction vers le substrat et le superstrat d'autre part à condition d'écrire correctement le terme source.

Dans la perspective d'un design complet des LEDs à nanofils organisés, il faudra coupler les résultats des deux outils mis en place afin de déterminer la géométrie qui est satisfaisante à la fois pour l'extraction (longueur d'extraction faible, bon rendement d'extraction) et l'émission (facteur de Purcell important, couplage aux "bons" modes guidés).

5.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, l'intérêt pour l'extraction de la lumière, d'organiser de manière périodique l'indice de réfraction a été rappelé. Un des principaux avantages de la périodicité est que les cristaux photoniques permettent d'extraire par diffraction une partie de la lumière guidée. Cette lumière restait auparavant piégée dans la couche active par réflexion totale interne. Les LEDs à cristaux photoniques actuelles reposent sur ce principe. Les nouveaux modes guidés sont dénommés modes de Bloch. Pour prédire en partie, l'extraction de lumière par un mode de Bloch, il est intéressant de tracer le diagramme de bande de celui. Le principe

d'extraction des cristaux photoniques a été testé dans le cadre de la thèse, par photoluminescence résolue en angle sur des couches de *GaN*. Le but était de tracer un diagramme de bande expérimental de la structure afin de le comparer à celui théorique. Ainsi seuls une partie des modes de Bloch apparaissent finalement sur le diagramme. En effet il ne suffit pas pour la structure d'avoir des modes propres dont la composante planaire du vecteur d'onde est inférieure à k_0 , la lumière émise par la source doit également se coupler efficacement à ces modes.

D'après les résultats de la littérature, le potentiel des LEDs à cristaux photoniques à base de nanofils est important par rapport aux dispositifs standards aussi bien pour obtenir une extraction de la lumière efficace et omnidirectionnelle que pour renforcer le facteur de Purcell de l'émetteur.

Il est nécessaire pour répondre à ces besoins et de trouver le design optimal, d'avoir des outils théoriques pour déterminer les propriétés d'un cristal photonique. Des codes de RCWA permettent de déterminer certaines propriétés des modes de Bloch d'une part et de l'émission de la source d'autre part. Des illustrations ont pu mettre en évidence l'intérêt des outils théoriques pour un design.

Par la suite, la perspective de ce travail est de développer des outils adaptés à l'émission des puits quantiques dans des cristaux photoniques. La FDTD sera vraisemblablement l'outil utilisé pour ce calcul. Ensuite il s'agira de combiner les résultats précédents afin d'établir un design de LED à nanofil combinant une bonne extraction des modes guidés et un bon couplage de la source à ces modes.

Aucune vérification expérimentale sur des nanofils n'a pu être réalisée au cours de la thèse. En effet ce type de structure nécessite d'une part une technologie de fabrication maîtrisée soit par de la croissance localisée de nanofils soit par des techniques de gravures compliquées permettant de réaliser des fils et non une membrane. A ce jour ces technologies ne sont pas encore maîtrisées au sein du projet Carnot Éclairage mais des exemples existent dans la littérature (cf. chapitre 2). Il sera intéressant par la suite de comparer les résultats théoriques avec les valeurs expérimentales.

La suite de ce travail sur les nanofils organisés serait également l'étude de l'impact de la prise de contact sur les résultats précédents. En effet les contacts supérieurs restent un problème majeur dans le cas des fils. Dans le cas d'une structure axiale, la prise de contact pourrait être effectuée en enrobant les nanofils d'ITO sur la zone dopée p après avoir isolé la partie dopée n par un enrobant de silice. L'ITO pourrait ensuite être relié électriquement à un peigne de contact métallique.

CONCLUSION

Durant cette thèse, je me suis intéressée à l'émission et à l'extraction de la lumière dans des structures à base de nanofils en matériau GaN ou ZnO . Divers systèmes ont été étudiés et des conclusions intéressantes sur l'extraction ont pu être obtenues dans le but d'une utilisation des nanofils en tant que couche active de diode électroluminescente à la fois dans le domaine de l'éclairage mais également, de façon plus marginale, pour les télécommunications (couplage de la lumière à une fibre optique).

La première géométrie qui a été explorée est celle du nanofil isolé. Celle-ci permet de rendre compte du cas où les fils sont suffisamment éloignés les uns des autres pour pouvoir être considérés comme isolés d'un point de vue électromagnétique. Les phénomènes d'émission et d'extraction dans un nanofil unique sont contrôlés par les différents modes existants dans une telle structure. Certains modes guident naturellement la lumière vers les extrémités du fil ce qui est favorable pour l'extraction tandis que d'autres modes exaltent le taux d'émission spontanée. Tous les modes étant en compétition, le meilleur design sera un compromis entre l'émission et l'extraction. Ainsi des rendements théoriques supérieurs à 50% peuvent être atteints pour les LEDs axiales et supérieurs à 40% pour les LEDs radiales. Ces valeurs sont largement supérieures à celle des LEDs planaires non structurées.

Cette première partie de mon travail consistait en une introduction pédagogique au potentiel des LEDs à nanofils pour l'extraction. Mes contributions furent de compléter l'état de l'art en calculant les rendements d'extraction théoriques pour les deux types de LED à nanofils. Un inconvénient majeur à ce type de LED est que la surface émettrice des puits quantiques est dans certains cas fortement réduite par rapport aux LEDs classiques planaires, ce qui limite intrinsèquement la puissance maximale qu'il est possible d'émettre.

Un moyen d'augmenter la surface émettrice consiste à rapprocher les nanofils entre eux. Les nanofils GaN MBE fabriqués au CEA vont dans ce sens. En effet ces fils sont séparés d'une distance très inférieure à la longueur d'onde d'émission. L'étude de cette deuxième organisation m'a amenée à considérer ces couches de fils comme des milieux d'indice effectif. Les nanofils de GaP avaient déjà été caractérisés sous la forme de couche anisotrope dans la littérature. Une des nouveautés de ce travail est que ce modèle n'avait pas été jusqu'alors vérifié expérimentalement pour le GaN , matériau d'indice plus faible que le GaP . Le grand rendement d'extraction de ces couches directement sur un substrat de silicium ouvre

des perspectives intéressantes pour l'utilisation des nanofils en tant qu'alternative aux LEDs planaires actuelles.

La dernière technique d'organisation des nanofils qui a été considérée, consiste à regrouper les nanofils auparavant isolés en un réseau périodique de manière à réaliser un cristal photonique. Les LEDs planaires à cristaux photoniques avaient permis avant cette thèse de montrer l'intérêt de la périodicité pour l'extraction. Cependant une gravure complète de la structure ne semblait pas réalisable pour des raisons technologiques. Le premier atout des nanofils est que la source fait intégralement partie du cristal. Par conséquent le réseau de nanofils modifiera également l'émission de lumière dans la structure. Le second avantage est que les épaisseurs des nanofils peuvent être faibles contrairement aux LEDs planaires *GaN* tout en ayant une bonne qualité cristalline *a priori*, ce qui autorise la réalisation de couches ne supportant qu'un mode guidé, et donc la simplification de l'étude et de l'optimisation de la structure. Ainsi un design précis à la fois de l'émission, de l'extraction et de la directivité devient possible avec les réseaux de nanofils. Cette dernière partie de ma thèse différente des précédentes, a rappelé les phénomènes physiques majeurs des cristaux photoniques et leurs potentiels pour les LEDs, ce qui apporte des perspectives sur le design complet de ces dispositifs.

Le contact électrique étant nécessaire pour obtenir une LED, une des perspectives au delà de ce travail de thèse est d'étudier l'impact de la prise de contact métallique dans chacune des trois géométries de nanofils. Le rendement d'extraction d'un dispositif réel pourra alors être évalué.

Par ailleurs les structures les plus avancées pour la réalisation de LEDs à nanofils sont les ensembles denses et désorganisés. Des LEDs à nanofils complètes ont déjà été réalisées dans le cadre du projet Carnot Éclairage. Les perspectives de croissance de réseaux organisés sur des substrats structurés grâce à la nano-impression par exemple permettront de contrôler plus efficacement les caractéristiques des LEDs à nanofils. Les conclusions de ce travail de thèse pourraient alors être prise en compte lors du futur design de ces LEDs. Cependant au delà du design de l'extraction, l'optimisation du rendement interne reste aussi un problème ouvert.

Il pourra être intéressant à plus long terme d'utiliser judicieusement autour de la couche de nanofils, des empilements de matériaux anisotropes ou isotropes permettant à la fois de réaliser le contact électrique tout en renforçant l'extraction. Par exemple, la superposition de couches de nanofils denses pourrait renforcer l'anisotropie et, peut-être, créer une source polarisée.

Par ailleurs ce travail de thèse étant essentiellement théorique, une des perspectives majeures est la réalisation expérimentale des dispositifs étudiés dans le but de les caractériser afin d'observer les phénomènes mis en évidence. Notamment pour les cristaux photoniques à nanofils, des couches fines de *ZnMgO* avec des puits de *ZnO* devraient être prochainement gravées et observées en photoluminescence.

Concernant les fils uniques, l'observation des micropiliers de *GaAs* devrait également apporter des informations importantes sur à la fois le couplage du puits aux modes guidés et sur l'adiabaticité d'une forme de fil en aiguille.

Résumé.

Ces annexes présentent tout d'abord le principe de la méthode FDTD avant d'illustrer des travaux effectués pendant la thèse qui viennent compléter l'étude des nanofils uniques. L'impact de la forme hexagonale sur les modes guidés et sur l'émission est ainsi illustrée avant de présenter les propriétés des fils de *GaAs* qui sont d'indice plus grand que le *ZnO* et dont la longueur d'onde d'émission est de l'ordre de $1\mu m$. Enfin le détail des étapes de réalisation d'un cristal photonique *GaN* par gravure est expliqué.

A.1 FDTD

La méthode FDTD (Finite Difference Time Domain) (Taflave and Hagness, 2000) est basée sur la discrétisation temporelle et spatiale des équations de Maxwell en remplaçant les dérivées partielles par leur développement de Taylor à l'ordre 2 autrement dit par des différences finies. La FDTD est utilisée dans de nombreux domaines actuellement comme l'imagerie ou les communications optiques.

Le domaine de calcul est discrétisé dans les trois dimensions (pour un calcul 3D), suivant un maillage spatial de pas Δ_i avec i la direction considérée (x , y ou z). L'espace temporel est discrétisé avec un pas Δ_t .

L'algorithme de Yee (Yee, 1966) repose sur deux sous maillages, l'un pour le champ électrique et l'autre pour le champ magnétique. Ces deux maillages ont un pas Δ_i et sont espacés l'un par rapport à l'autre de $\Delta_i/2$ comme représenté sur la figure A.1. Les composantes du champ électrique en un point à l'instant t sont calculés à partir des composantes du champ électrique au même point à l'instant $t - \Delta_t$ et des composantes de champs magnétiques environnantes à l'instant $t - \Delta_t/2$. Il en est de même pour le champ magnétique mais avec des calculs décalés de $\Delta_t/2$.

L'évolution du champ électromagnétique en fonction du temps est ainsi déterminée par un processus itératif en chaque point du maillage. Une des difficultés dans l'utilisation de la FDTD est le choix des valeurs des paramètres de maillages. Une convergence satisfaisante est généralement obtenue pour un pas d'environ $\lambda/20n$ avec n l'indice optique du milieu.

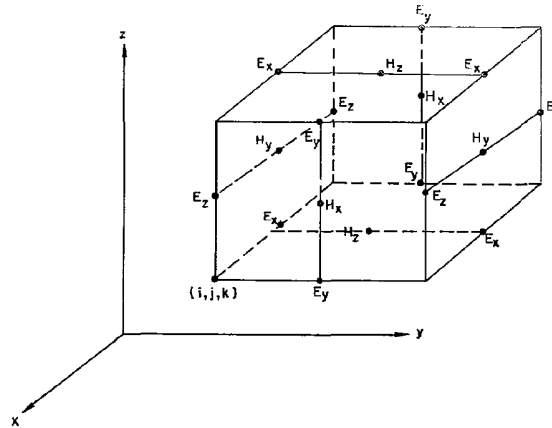


FIGURE A.1 – Cellule de Yee à trois dimensions, (Yee, 1966)

J'ai utilisé dans le cadre de la thèse le logiciel commercial Lumerical FDTD¹ installé sur des supercalculateurs. En effet un inconvénient à la FDTD est le temps de calcul et l'espace mémoire importants. De plus l'étude des nanofils a nécessité des calculs en trois dimensions.

Ce logiciel m'a permis d'utiliser comme source d'excitation un mode guidé, un dipôle électrique ou une onde plane. Pour modéliser un milieu infini, il est nécessaire de positionner aux extrémités du domaine, des PML (Perfectly Matched Layers). Ce sont des couches absorbantes qui permettent d'obtenir une adaptation d'impédance entre le matériau et le vide pour éviter toute réflexion. Les conditions aux limites de symétrie et d'antisymétrie permettent de réduire le temps de calcul.

1. Site internet <http://www.lumerical.com/fdtd.php>

A.2 Comparaison fils hexagonal et circulaire

Les propriétés des fils hexagonaux ont été présentées à la conférence NFO 10 à Buenos Aires en 2008 (Henneghien et al., 2008) ainsi que dans une publication dans Journal of Optical Society of America A (Henneghien et al., 2009b). Cette annexe reprend les parties concernant les fils hexagonaux de cet article.

A.2.1 Modal properties

In planar heterostructures, some part of the light is guided in the layers due to total internal reflection and is lost in the most cases. In the same way, the nanowire acts as a waveguide along its axis supporting at least one guided mode (Snyder and Love, 2000a). Thus this part of light is well directed to be extracted from the nanowire that is why it is interesting to study the modal properties.

The field distribution of the first guided modes is represented for a circular nanowire and for a hexagonal nanowire in figure A.2. Circular transverse modes like TE_{01} (transverse electric) and TM_{01} (transverse magnetic) do not have an azimuthal field dependency and have only three field components (they are non degenerated modes). This last property is still verified with hexagonal nanowires. Conversely, the fundamental mode HE_{11} has a two fold polarization dependency, as a result it is a degenerated mode also called hybrid mode. HE_{11}^x and HE_{11}^y have the same modal properties in a circular nanowire since the structure is rotation invariant. Snyder et al. in (Snyder and Love, 2000a) give more details about the classification of modes upon their field components properties. The hexagonal section of the nanowire removes this degeneracy due to the symmetry reduction of the structure giving rise to HE_{11}^x and HE_{11}^y modes which are no longer equivalent. We note that the transition of a circular section to a hexagonal section modifies the guided modes field distribution which motivates us to further study the impact on the optical properties of a nanowire.

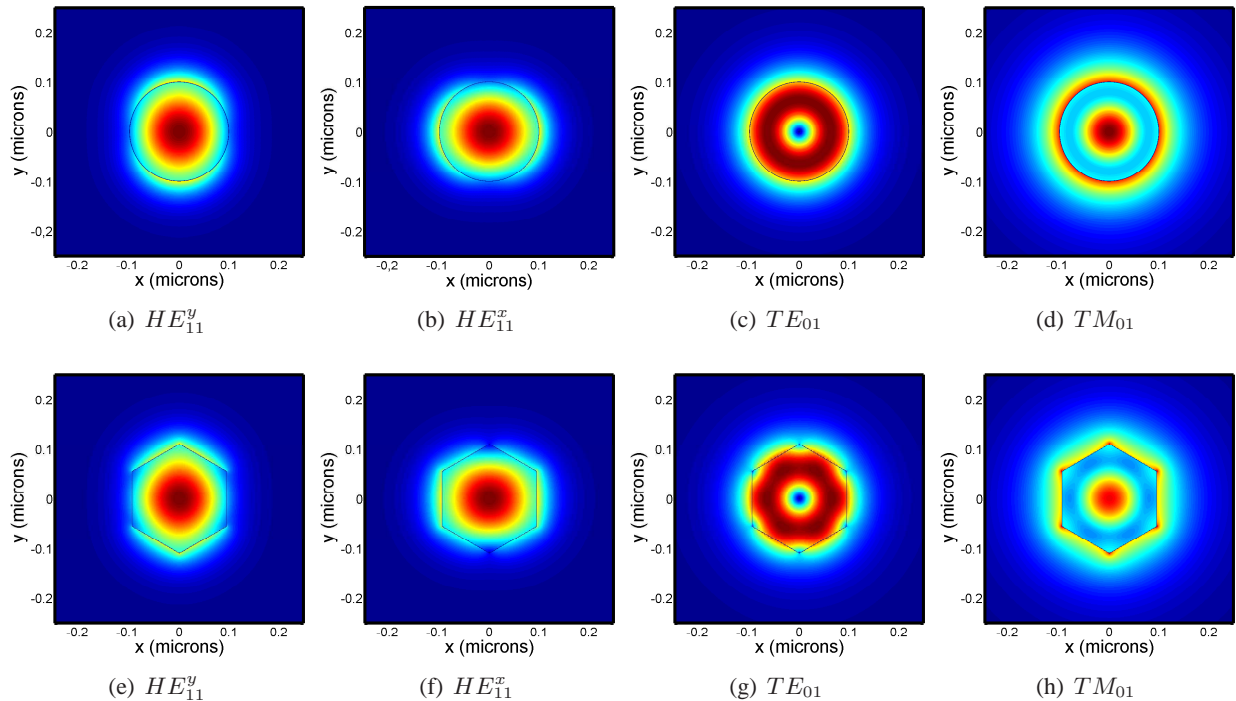


FIGURE A.2 – Electric field intensity distribution of the four first guided modes of a circular nanowire with a radius $r = 100nm$ (HE_{11}^y (a), HE_{11}^x (b), TE_{01} (c) and TM_{01} (d)) and a hexagonal nanowire with an edge $a = 110nm$ (e,f,g and h, respectively same names) at wavelength $\lambda = 380nm$.

We plot (fig. A.3) for several radii the effective index which is defined as kz/k_0 with kz being the propagation wave vector and k_0 the wave vector in air. We observe that hexagonal and circular wires have nearly

the same effective indices if we compare a circular nanowire of radius r and a hexagonal wire of side a with $a \approx r \times 1.1$. This scaling factor (already mentioned in (Nobis and Grundmann, 2005)) matches the area of both types of nanowire :

$$\frac{3\sqrt{3}}{2}a^2 = \pi r^2 \quad (\text{A.1})$$

This scaling factor illustrates that the effective index mainly depends on the surface of the nanowire section rather than on its shape. Hybrid modes of hexagonal nanowires which are no longer degenerated and have different field distributions, like HE_{11}^x and HE_{11}^y , have nevertheless very similar effective indices.

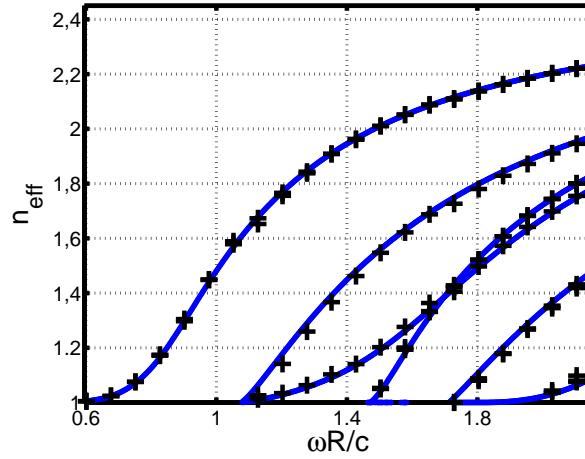


FIGURE A.3 – Dispersion curve in air versus $\omega r/c$. Solid line : circular nanowire of radius r ; crossed line : hexagonal nanowire with side length a taken to be equal to $r \times 1.1$.

A.2.2 Reflection

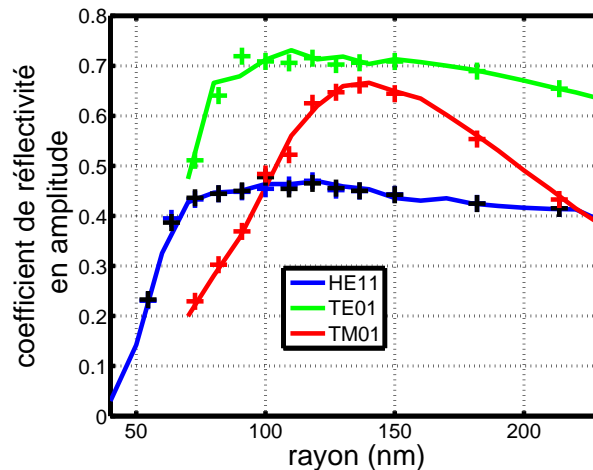


FIGURE A.4 – Absolute value of the reflection coefficient at an air interface for the first three guided modes of circular (solid lines) or hexagonal nanowire (crossed lines). For hexagonal nanowires r is the equivalent radius. The dotted line represents the reflection of a plane wave in an effective dielectric medium whose the reflective index is the one of HE_{11} .

We will now compare reflection coefficients of guided modes of hexagonal and circular nanowires, which is an important parameter for laser or LED applications. Indeed the total extraction efficiency which is one the

main parameter of LED efficiency, is defined as the fraction of radiated power through the nanowire surface to the total emitted power (Fan et al., 1997).

As explain in part A.2.1, the guided light is well directed to be extracted from the nanowire. So we define the guiding extraction efficiency as the fraction of the emitted flux due to the guiding modes along the nanowire, through the top of the nanowire to the total emitted flux :

$$\eta_{ext} = \sum_{mode} (1 - R_{mode}) F_{mode} \quad (A.2)$$

with R_{mode} the mode reflectivity in intensity on the different modes and F_{mode} the coupling factor of the emitted power on the mode. Thus after having specified the portion of the emitted power which is coupled to the guided mode (see next part), the modal reflection values will determine the guiding extraction efficiency of the guided modes.

The mode reflection coefficient depends on the radius of the nanowire, the index of the nanowire, the index of the surrounding area (including substrate or superstrate) and the wavelength. We consider an abrupt termination of the nanowire with an exit facet perpendicular to the nanowire axis.

A mode solver first determines the field components of each mode existing in an infinite nanowire (no reflected signal). This mode profile is used for light injection in a finite-length nanowire. An overlap between the stored reflected field and the field of each mode yields the modal reflection, as well as the diffraction losses induced by the reflection process.

The reflection coefficients are displayed in fig. A.4 for the first four guided modes for a hexagonal nanowire and compared with the corresponding guided modes of a circular nanowire (the nanowire sections of each structure have the same area). Note that we plot here the modal reflectivity coefficient, corresponding to the reflection of a guided mode on itself. The resulting reflection coefficients are the same for the two structures (hexagonal and circular) and are very similar to the results published in (Maslov and Ning, 2003). Again, as the guided wave reaches the interface with normal incidence, the reflection coefficients seem to depend mostly on the field distribution between the nanowire and the surrounding environment.

A.2.3 Spontaneous emission

In this section, we study spontaneous emission properties of emitters embedded in nanowires which is of interest in the context of application to solid state lighting or single photon sources and to specify the light extraction efficiency. The aim of this part is to compare the spontaneous emission properties in a circular nanowire and in a hexagonal nanowire in some cases corresponding to three different sources. The spontaneous emission can be divided in two parts : the guided power and the free-space power. The first one is the portion of the emitted power which couples to the guided modes along the nanowire and the other one is the light which is emitted directly outside of the nanowire.

As a first step, we focus on isolated single nanowires and especially on two kinds of nanowire-based LED schemes. In this section, we review three cases : the first one is a single point emitter in an isolated nanowire, the second point is an axial quantum well (fig. A.5(a)) and the third a radial quantum well (fig. A.5(b)).

A.2.3.1 A single point emitter in an isolated nanowire

We hereafter study the influence of the in plane position of a point-dipole whose polarization is perpendicular to the nanowire axis (φ and ρ , fig. A.5(c)). This situation is encountered experimentally in high-efficiency single photon sources based on a single self-assembled quantum dot in a photonic wire (Friedler et al., 2009). A quantum dot can be modeled by a source dipole with in-plane orientation in wurtzite material if we consider that the lateral confinement is not important (same behavior as an axial quantum well).

The modal field of hexagonal and circular nanowires are different, so we expect that these differences will imply some coupling differences. To study this phenomenon, we place the source at the maximum of the field and change the position along a hexagonal or circular line (fig. A.6(a) and (b)). The distance from the center is

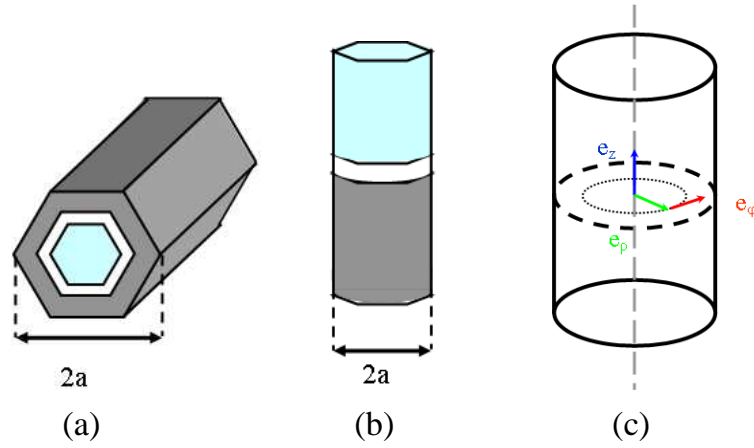


FIGURE A.5 – (color online). Definition of the two kinds of nanowire-based LED schemes, axial heterostructure (a) and radial heterostructure (b), and definition of the three dipole polarizations in a cylindric system, (c).

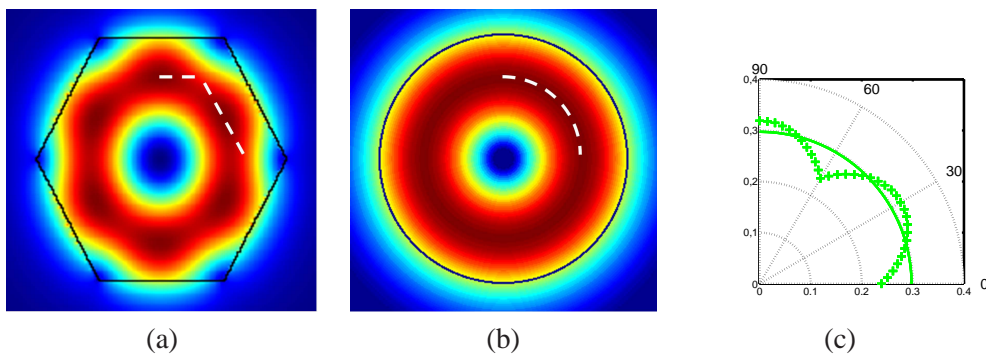


FIGURE A.6 – Source position in white for a hexagonal (a) and a circular (b) wire, (c) fraction of TE_{01} mode guided power versus angle in degree for a circular nanowire (solid lines) with radius=100 nm and for a hexagonal nanowire (crossed lines) with side=110 nm. The nanowire is placed in air and the emission wavelength is 380 nm.

equal to 70 nm in the circular section case. As can be seen in figure A.6(c) which represents the portion of the emitted power on the guided mode TE_{01} , a hexagonal section can show a different coupling value depending on the source position, as expected. The angle average value of the hexagonal coupling is very similar to the circular coupling.

A.2.3.2 An axial quantum well

This structure represents the most common LED nanowire structure. In that case, the quantum well is placed in a section perpendicular to the growing axis (fig. A.5(a), (Kishino et al., 1998)). A quantum well is represented by a uniformly distributed dipole section. For an axial quantum well in wurtzite material, the quantum well is polar. Furthermore Rau et al. (Rau et al., 2000) have observed that the heterostructure in that case, can be modeled by a uniform distribution of in plane dipoles. In this configuration, the in-plane dipoles have φ and ρ orientations (fig. A.5(c)). The correspondence between polarization and planar or vertical orientation are summarized in table A.1 for the two LED schemes. The figure 3.22 represents the guided power and the free-space power emitted by several uniformly distributed dipoles as function of the wire radius. The power is normalized by the total power emitted by the source in the nanowire. As we can see on the figure the impact of the nanowire shape is not important on the coupling of the emitted power with the guided modes and the free-space modes. Indeed as observed in the single point emitter case, the dipole emission differences between circular and hexagonal nanowires are average over the whole surface.

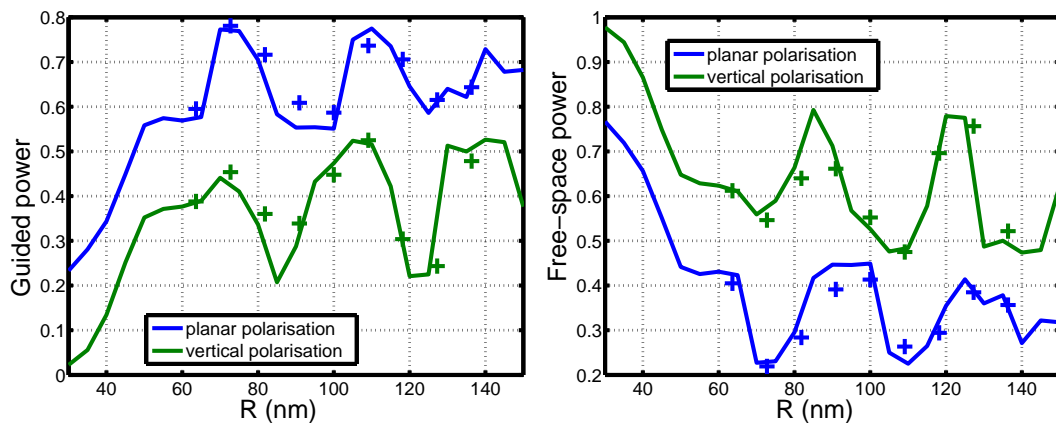


FIGURE A.7 – Fraction of guided power (a) and free-space power (b) emitted for a nanowire in air by a quantum well for an axial heterostructure in a circular nanowire (solid line) and in a hexagonal nanowire (crossed line). The cutoff values of the modes are displayed vertically. The planar polarization includes φ and ρ dipole orientations and the vertical polarization represents z orientation.

One can note on fig. A.7(a), that for $\omega r/c \simeq 1.8$ nearly 90% of the emitted power is guided along the wire. By calculating each mode reflectivity coefficient, we find a guiding extraction efficiency (defined by the eq. A.2) to air of 60% (we consider in that case only the light emitted to the top of the wire). This result is very interesting and has to be compared to the 10% of extraction of simple planar heterostructure. In the monomode part, the maximum of coupling on HE_{11} is equal to 56% and corresponds to $\omega r/c \simeq 0.9$, but the guiding extraction efficiency is maximum (55%) for $\omega r/c \simeq 0.8$. The maxima of the figure A.7(a) appear for each radius slightly larger than the guided mode cutoff radius. This can be explained by the poor field confinement within the nanowire at the mode cut-off radius which leads to a weak coupling between the mode and the source.

The different maxima in fig. A.7(b) are due to a high coupling to free-space modes which exist in the section of the nanowire. We plot the fields in the source plane to identify them and we conclude that they are whispering gallery modes (WGM). Indeed some WGMs can exist in circular nanowire (Rusakov et al., 2007) due to multiple internal reflection at the boundary. Contrary to laser application (Vahala, 2003), in that case the

orientation	axial quantum well	radial quantum well
planar	φ and ρ	φ and z
vertical	z	ρ

TABLE A.1 – Dipole orientation as function of heterostructure type.

resonances are weak due to the very low order of the modes (Yang et al., 2007). This light is less interesting for light extraction because the direction propagation is perpendicular to the nanowire axis and the light extracted from the nanowire in the surrounding medium, may not escape from the structure due to total internal reflection. We report in table A.2.3.2 the first WGM cut-off radii at 380 nm. In planar orientation, the dipole polarization

TABLE A.2 – First whispering gallery modes $\omega r/c$ cutoff of a circular nanowire.

m	WGH modes $\omega r/c$ cutoff	WGE modes $\omega r/c$ cutoff
0	0.92 (WGH_{01}) and 2.2 (WGH_{02})	0.35 (WGE_{01}) and 1.62 (WGE_{02})
1	1.48	0.92
2	1.92	1.46
3	2.387	1.99

is ρ and φ , as a result the source can couple to TE polarization WGMs (WGE) and TM polarization WGMs (WGH) and we can observe peaks when the radius correspond to a WGM cutoff or a slightly higher radius(fig. A.7(b)). In vertical orientation only WGH modes coupling is possible, that is why there is no signature of WGE modes.

For hexagonal nanowires, Nobis et al. in (Nobis and Grundmann, 2005) have observed a similar phenomenon, they determined the lowest-order resonant modes of a hexagonal nanowire using a numerical boundary element method. On figure A.7(b), there are too the mode signatures for the hexagonal nanowire.

As the sum of the two graphs is equal to one, the fluctuations of the two graphs are correlated : when one power is well coupled to a mode and is consequently maximum, the second power is minimum. Maslov et al. in (Maslov et al., 2006) show that the total emitted power normalized by the power emitted in a homogenous dielectric fluctuate likewise. The next part underlines that the total emitted power of a radial quantum well is dominated by the coupling to WGMs rather than to the guided modes.

Finally for both axial or radial structures we note that there is a good overlap of the results for hexagonal and circular nanowire (when the scaling factor is applied).

A.2.4 Conclusion

To conclude we have presented the waveguiding and optical emission properties of ZnO or GaN nanowires obtained by FDTD simulations. We showed that the circular and hexagonal nanowires have the same behavior if the nanowire sections of each structure have the same area. The results also show that the analogy with the reflection of a plane wave is only valid for some very specific conditions.

A.3 Influence d'une gaine métallique sur les modes guidés d'un fil unique

La présence de contact métallique soit à l'extrémité du nanofil dans le cas de la LED axiale soit sur toute la longueur du nanofil dans le cas de la LED radiale va plus ou moins modifier le comportement des modes guidés suivant le type de métal et son épaisseur.

A.3.1 Les plasmons cylindriques

Lorsqu'une onde plane se réfléchit sur un plan métallique, dans certains cas une onde de surface entre le milieu d'incidence et le métal peut être excitée, figure A.8(a) : c'est une onde plasmonique (Maier, 2007). Le plasmon en se propageant est progressivement absorbé par le métal. Suivant la longueur d'onde et le type de métal, la longueur de propagation sera plus ou moins importante.

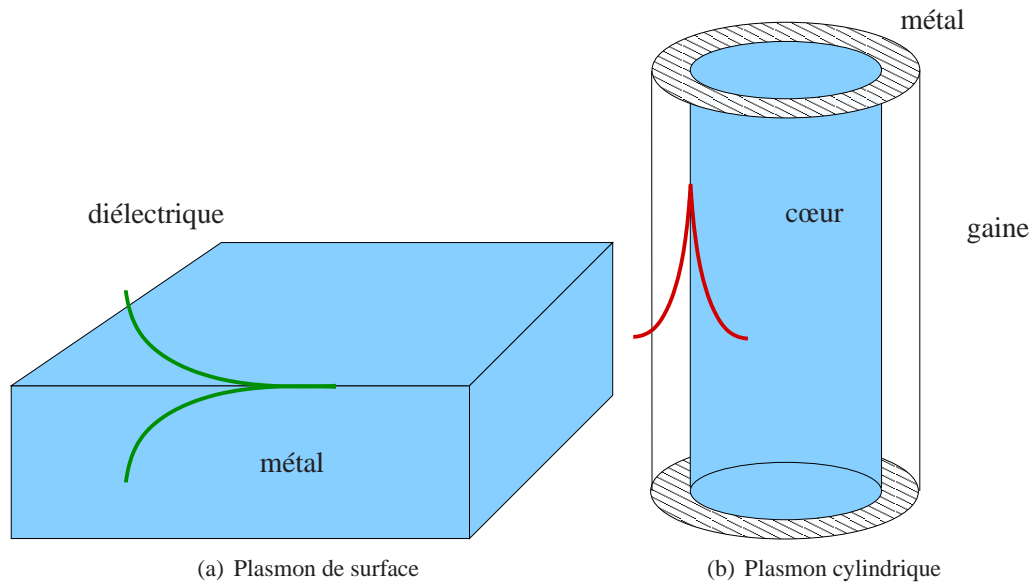


FIGURE A.8 – Les différents types de plasmons existants

A l'interface entre un cylindre diélectrique et une coquille de métal comme représenté sur la figure 3.7, un plasmon cylindrique peut exister. Afin de conserver le même formalisme que (Krishnamurthy and Klein, 2008), ces modes auront le suffixe SP. Il peut également exister un plasmon à l'interface entre la gaine enrobante et le métal. Les propriétés de ces plasmons ont été étudiées pour des applications laser ou dans l'étude d'une pointe de microscope pour un SNOM (Scanning Near-field Optical Microscopy) (Krishnamurthy and Klein, 2008; Schröter and Dereux, 2001).

Pour établir les relations de dispersion de ces modes, l'approche est semblable à celle utilisée précédemment pour les modes guidés : il faut résoudre les équations de Maxwell dans les trois milieux (gaine, métal et cœur), puis en écrivant les conditions aux limites, les modes propres solutions sont ensuite déterminés.

Au cours de la thèse, j'ai été amené à encadrer un stagiaire de master 2 de recherche dont le sujet de recherche était "les nanoguides semi-conducteur-métal, applications aux diodes électroluminescentes à nanofils" (Ludwig, 2009). André Ludwig a ainsi développé les codes permettant de tracer les nouvelles courbes de dispersion.

Les modes de propres ont alors une constante de propagation complexe : $\beta + i\alpha$. Le mode n'est donc plus parfaitement guidé, des pertes sont présentes. L'intensité est de la forme :

$$I = I_0 \exp(-2\alpha z) \quad (\text{A.3})$$

la longueur caractéristique est donc égale à $L = 1/2\alpha$ et correspond à une atténuation de l'intensité de 37%.

A.3.2 Exemples

A.3.2.1 Gaine d'argent

Les courbes de dispersion complexes sont présentées sur la figure A.9 pour une gaine d'argent d'épaisseur finie ($n = 0.15 + 2.49i$ à $\lambda = 450nm$, (Palik, 1998)). Comme on peut le constater, pour de faibles épaisseurs de gaine, il n'y a pas création de nouveaux modes plasmons SP (pas de nouvelles courbes de modes) mais les modes guidés sont fortement modifiés par la présence d'une gaine métallique même de faible épaisseur : ils sont devenus des modes guidés plasmoniques. Le rayon de coupure des modes est généralement plus grand que celui sans la gaine d'argent.

Pour une gaine d'argent d'épaisseur $20nm$ et un rayon de fil de $85nm$ ($R/\lambda = 0.19$), la longueur caractéristique d'atténuation du mode fondamental est de $605nm$. Cette longueur est à comparer avec les hauteurs typiques de nanofils qui sont de l'ordre de 1 à $2\mu m$.

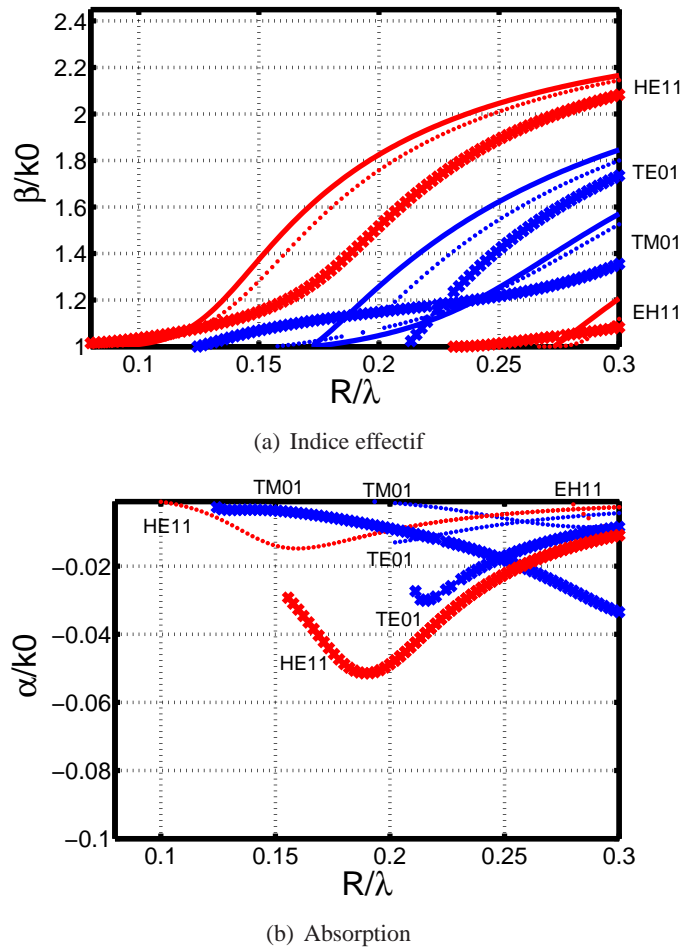


FIGURE A.9 – Partie réelle et imaginaire de la dispersion d'un nanofil entouré d'une gaine d'argent (le tout entouré d'air) à la longueur d'onde de $450nm$. En trait continu le nanofil sans la gaine d'argent, en traits pointillés une gaine d'épaisseur $5nm$ et en croix une gaine d'épaisseur $20nm$.

A.3.2.2 Gaine d'aluminium

L'aluminium a pour indice à $450nm$, $n = 0.618 + 5.47i$ (Palik, 1998). La partie imaginaire est plus importante que dans le cas de l'argent, par conséquent l'aluminium est plus proche du métal parfait que l'argent à cette longueur d'onde, ce qui le rend favorable à la propagation des modes plasmons. Les courbes de dispersion

des différents modes existant dans le cas d'une gaine d'aluminium de $20nm$ d'épaisseur sont présentées sur la figure A.10.

On constate que dans le cas de l'aluminium, il y a création de modes plasmons SP dont le maximum de champ

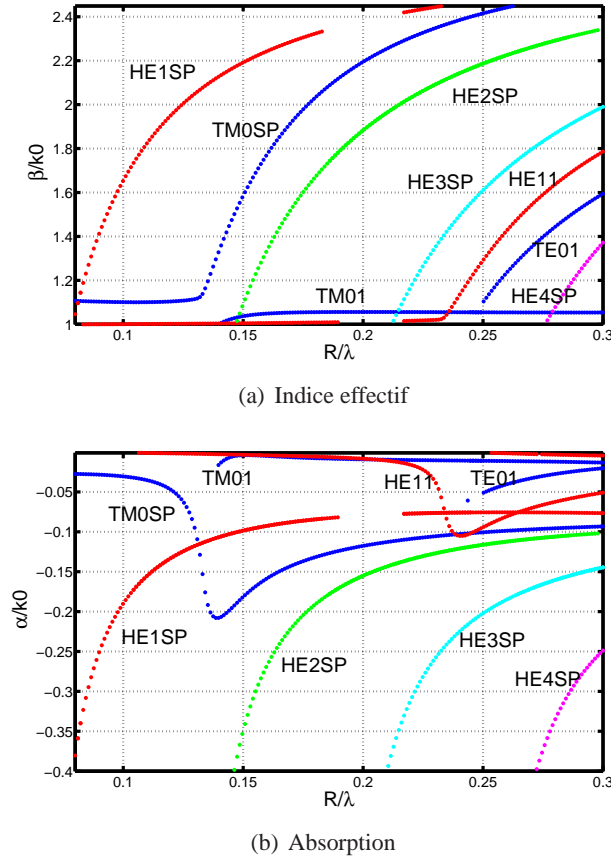


FIGURE A.10 – Partie réelle et imaginaire de la dispersion d'un nanofil entouré d'une gaine d'aluminium d'épaisseur $20nm$ le tout entouré d'air à la longueur d'onde de $450nm$.

est localisé à l'interface entre le diélectrique et le métal. Il n'y a pas de création de modes plasmons TE car ce type de mode ne peut pas exister par définition.

Par ailleurs tout comme l'avaient remarqué les auteurs de (Krishnamurthy and Klein, 2008), les modes guidés plasmoniques à l'interface air-métal correspondent aux anciens modes guidés lorsqu'ils étaient déconfinés dans l'air. Ces modes ont des pertes moins importantes que les modes plasmons SP. Ensuite lorsque le mode guidé se confine, l'atténuation α passe par un minimum ($-0.1k_0$ pour HE_{11} pour $R = 0.24\lambda$) lors du passage du plasmon de l'interface air-métal à métal-diélectrique. Puis les pertes diminuent avec l'augmentation du rayon jusqu'à tendre vers une valeur asymptotique en raison du confinement du mode dans le cœur.

A.3.3 Conclusion

Ainsi il sera préférable d'utiliser l'argent plutôt que l'aluminium pour prendre les contacts autour du fil afin d'éviter la création de modes plasmons SP à pertes. Néanmoins même une très fine couche d'argent modifie de façon significative les modes guidés. Dans le cas des LEDs radiales, le contact est présent sur toute la hauteur du nanofil, il pourra être plus intéressant d'utiliser de l'ITO comme matériau enrobant plutôt qu'une gaine métallique afin d'éviter des pertes trop importantes et de favoriser le guidage. Malheureusement la partie réelle de l'indice de l'ITO est proche de 1.8, ce qui diminuera le phénomène de guidage par rapport à une gaine d'air.

A.4 Fils de GaAs

L'indice du *GaAs* vaut $n = 3.5$ à la longueur d'onde de $1\mu m$, il est donc beaucoup plus grand que celui du *GaN* ou du *ZnO* aux longueurs d'onde d'émission respectives. Les modes guidés ainsi que les modes de galeries sont donc différents par rapport aux modes précédemment étudiés. La figure A.11 présente l'indice effectif des modes guidés d'un fil de *GaAs*. Contrairement au *GaN*, l'évolution de n_{eff} de 1 vers 3.5 est très rapide ce qui signifie que les modes guidés se confinent très rapidement dans le pilier. Cette propriété est avantageuse pour la réalisation de LED car les fils pourront être rapprochés les uns des autres d'une distance plus importante que dans le cas du *GaN* car un indice de réfraction plus grand renforce le guidage. Cependant ce fort indice augmentera également les coefficients d'extraction des modes guidés.

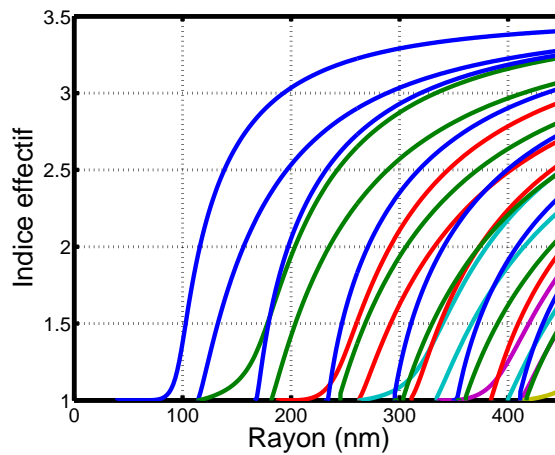


FIGURE A.11 – Indice effectif des différents modes guidés d'un fil de *GaAs* ($n = 3.5$) à la longueur d'onde $\lambda = 1\mu m$.

La puissance totale émise par un puits quantique sera également modifiée par rapport à celle dans le *GaN* comme on peut le constater sur la figure A.12. Les dipôles ρ et φ ont pratiquement la même évolution ramenée aux modes guidés existants dans la structure pour les rayons étudiés.

En revanche les dipôles orientés suivant z ont une puissance totale supérieure. Ces dipôles sont ceux qui se couplent le mieux aux modes de galerie. L'indice du semiconducteur ayant augmenté, ces modes ont un facteur de qualité plus important donc la lumière sera plus confinée dans le fil ce qui a pour conséquence de renforcer la puissance émise.

La figure A.13 présente la fraction de lumière guidée et de lumière libre dans le cas d'un puits axial. Les allures des courbes sont très similaires à celles obtenues avec le *GaN* et le *ZnO*. On pourra noter que dans le cas de la polarisation planaire, 63% de la lumière est guidée dans la zone monomode et plus de 90% dans la zone multimode. Ces valeurs élevées sont due au renforcement du guidage par l'augmentation de l'indice de réfraction. Dans le cas de la polarisation verticale, presque 80% de la lumière est émise sur les modes de galerie pour un rayon de $230nm$.

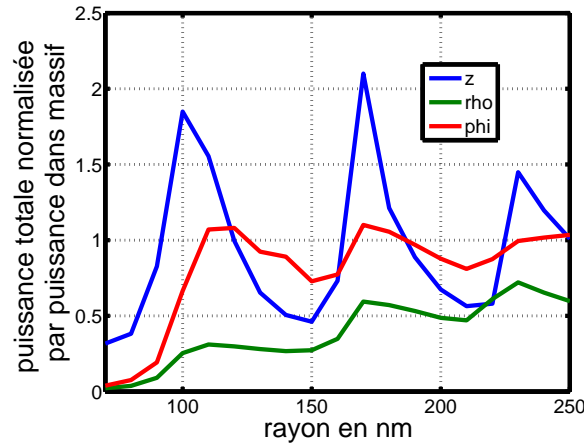


FIGURE A.12 – Puissance totale émise par une distribution uniforme de dipôle sur une section du nanofil pour les trois orientations possibles ($\lambda = 1\mu m$). La puissance est normalisée par la puissance qu'émettraient les mêmes dipôles dans du GaAs massif.

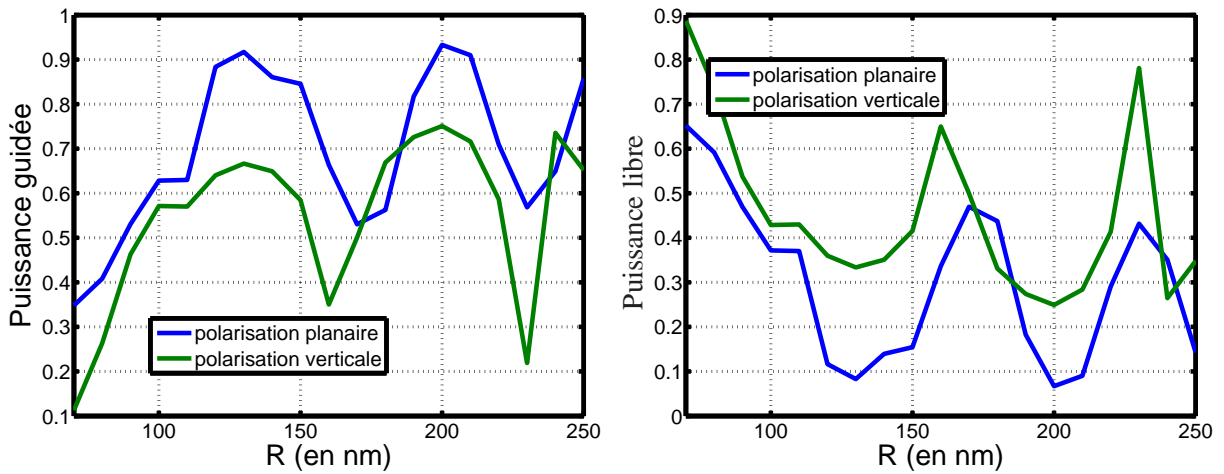


FIGURE A.13 – Fraction de lumière guidée totale (a) et de lumière libre (b) émises par une hétérostructure axiale dans un nanofil entouré d'air. Le rayon de coupure des modes est précisé en haut du graphe. La polarisation planaire inclue les orientations du dipôle suivant e_φ et e_r et la polarisation verticale représente les dipôles orientés suivant e_z .

A.5 Notations dans un cristal photonique

La figure A.14 résume les notations d'une maille triangulaire également appelée maille hexagonale.

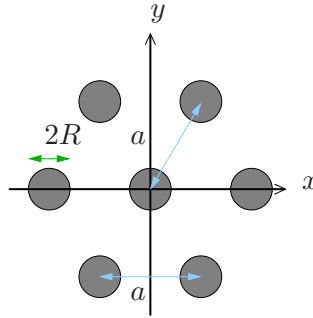


FIGURE A.14 – Schéma de quelques éléments d'un réseau à maille triangulaire, vue de dessus. R désigne le rayon des fils et a la période du réseau.

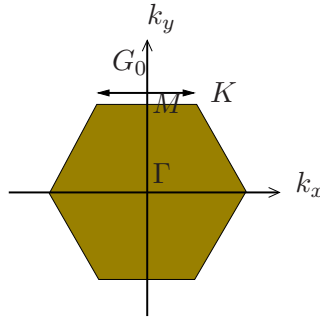


FIGURE A.15 – Première zone de Brillouin d'un réseau à maille triangulaire. G_0 est l'espacement entre les points du réseau réciproque dans l'espace de Fourier

Soit G_0 l'espacement entre les points du réseau réciproque dans l'espace de Fourier. Le réseau réciproque correspond à la transformée de Fourier du réseau périodique réel. Dans le cas d'un réseau de fentes ou d'un réseau carré, $G_0 = 2\pi/a$. Pour un réseau triangulaire, $G_0 = 4\pi/a\sqrt{3}$. Il est d'usage de donner un nom à des points particuliers du réseau réciproque. Soit Γ le point correspondant à l'origine du réseau réciproque. M se situe au point de coordonnées $(0; G_0/2)$. Dans un réseau triangulaire, K correspond au point $(G_0/2\sqrt{3}; G_0/2)$ (fig A.15). Pour un réseau bi-dimensionnel carré, la PZB est un carré de côté G_0 et X désigne le point $(G_0/2; G_0/2)$.

A.6 Procédé de fabrication d'un cristal photonique GaN par photolithographie au CEA-LETI

Une structure planaire a tout d'abord été réalisée par MOCVD. Le substrat est du saphir sur lequel on a fait croître $\sim 2.7\mu m$ de GaN non dopé afin d'obtenir une qualité cristalline suffisante pour pouvoir faire croître un puits quantique d' $InGaN$. Enfin une fine couche de GaN non dopé d'épaisseur de $270nm$ termine l'échantillon. Des tests de cartographie de photoluminescence ont été réalisés avant la gravure afin de s'assurer de l'uniformité d'émission du puits quantique. Ensuite, des mesures sur un microscope à force atomique (AFM) ont permis de vérifier la bonne qualité surfacique de la structure.

Le réseau a été fabriqué par la technique de photolithographie. Pour cela une couche de résine photosensible de $70nm$ d'épaisseur est déposée à la surface de l'échantillon. Ensuite un faisceau laser qui émet à $193nm$, traverse deux étages de réseaux avant de venir éclairer l'échantillon. Le premier étage comporte deux réseaux à fentes croisés tandis que le deuxième étage est constitué de deux doubles réseaux. Ainsi ce sont quatre faisceaux qui viennent interférer au premier ordre au niveau de la résine et ainsi créer le motif de cristal photonique. Cette technique permet de réaliser des réseaux de fentes et des réseaux de trous à maille carrée.

Le choix des réseaux conditionne le pas. Pour obtenir un pas de $350nm$ environ, les réseaux avaient un pas de $410nm$ pour le premier étage et $260nm$ pour le second.

La dose de puissance laser permet d'obtenir des trous de diamètre plus ou moins large par rapport à une taille moyenne correspondant à la moitié du pas du réseau. Les réseaux occupent une place $3 \times 4mm^2$ par réseau.

La gravure du GaN nécessite l'utilisation d'un masque dur en Si_3N_4 . En effet les gaz gravant le GaN ont une vitesse de gravure de la résine plus de 100 fois supérieur. Il faut donc utiliser un matériau intermédiaire. Dans un premier temps, le Si_3N_4 est gravé avec du gaz SF_6 au travers du masque en résine. La vitesse de gravure de la résine étant supérieure à celle du Si_3N_4 , la profondeur de gravure du masque dur est limitée par l'épaisseur de résine qui est elle-même limité par le processus de photolithographie. Puis le GaN est gravé au travers du Si_3N_4 par un gaz contenant du $SiCl_4$ ainsi que du Cl_2 . La vitesse de gravure du GaN est supérieure à celle du Si_3N_4 , ce qui permet d'atteindre des profondeurs de gravures jusqu'à $220nm$.

Bibliographie

- D. E. Aspnes. Optical properties of thin films. *Thin Solid Films*, 89 :249–262, 1982.
- A.-L. Bavecove, G. Tourbot, E. Pougeoise, J. Garcia, P. Gilet, F. Levy, B. Andre, G. Feuillet, B. Gayral, B. Daudin, , and L. S. Dang. Gan-based nanowires : From nanometric-scale characterization to light emitting diodes. *Physica Status Solidi A*, 207(6) :1425–1427, 2010.
- H. Benisty, R. Stanley, and M. Mayer. Method of source terms for dipole emission modification in modes of arbitrary planar structures. *J. Opt. Soc. Am. A*, 15(5) :1192–1201, 1998.
- M. Boroditsky, R. Vrijen, . F. K. R. Coccioli, R. Bhat, and E. Yablonovitch. Spontaneous emission extraction and purcell enhancement from thin-film 2-d photonic crystals. *JOURNAL OF LIGHTWAVE TECHNOLOGY*, 17(11), 1999.
- D. K. Bowen and B. K. Tanner. *X-Ray Metrology in Semiconductor Manufacturing*. 2006.
- K. Busch and C. M. Soukoulis. Transport properties of random media : An energy-density cpa approach. *Phys. Rev. B*, 54(2) :893–899, Jul 1996.
- C.-H. Chen, S.-J. Chang, S.-P. Chang, M.-J. Li, I.-C. Chen, T.-J. Hsueh, and C.-L. Hsu. Electroluminescence from n-zno nanowires/p-gan heterostructure light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, 95(22) :223101, 2009.
- H.-Y. Chen, H.-W. Lin, C.-Y. Wu, W.-C. Chen, J.-S. Chen, and S. Gwo. Gallium nitride nanorod arrays as low-refractive-index transparent media in the entire visible spectral region. *Opt. Express*, 16(11) :8106–8116, 2008.
- C. Constantin, E. Martinet, D. Y. Oberli, E. Kapon, B. Gayral, and J. M. Gérard. Quantum wires in multidimensional microcavities : Effects of photon dimensionality on emission properties. *Phys. Rev. B*, 66(16) : 165306, 2002.
- C. Czekalla, C. Sturm, R. Schmidt-Grund, B. Cao, M. Lorenz, and M. Grundmann. Whispering gallery mode lasing in zinc oxide microwires. *Applied Physics Letters*, 92(24) :241102, 2008.
- A. David. *High-efficiency GaN-based light-emitting diodes : Light extraction by photonic crystals and microcavities*. PhD thesis, Ecole polytechnique, 2006.
- A. David, C. Meier, R. Sharma, F. S. Diana, S. P. DenBaars, E. Hu, S. Nakamura, C. Weisbuch, and H. Benisty. Photonic bands in two-dimensionally patterned multimode gan waveguides for light extraction. *Applied Physics Letters*, 87(10) :101107, 2005.
- A. David, H. Benisty, and C. Weisbuch. Spontaneous emission in gan/ingan photonic crystal nanopillars. *Opt. Express*, 15(26) :17991–18004, 2007a.
- A. David, H. Benisty, and C. Weisbuch. Optimization of light-diffracting photonic-crystals for high extraction efficiency leds. *Display Technology, Journal of*, 3(2) :133–148, 2007b.

- A. David, B. Moran, K. McGroddy, E. Mاتيولي, E. L. Hu, S. P. DenBaars, S. Nakamura, and C. Weisbuch. Gan/ingan light emitting diodes with embedded photonic crystal obtained by lateral epitaxial overgrowth. *Applied Physics Letters*, 92(11) :113514, 2008.
- S. David, A. Chelnokov, and J.-M. Lourtioz. Isotropic photonic structures : Archimedean-like tilings and quasi-crystals. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 37(11) :1427–1434, 2001.
- D. Delbeke, P. Bienstman, R. Bockstaele, and R. Baets. Rigorous electromagnetic analysis of dipole emission in periodically corrugated layers : the grating-assisted resonant-cavity light-emitting diode. *J. Opt. Soc. Am. A*, 19(5) :871–880, 2002.
- S. Fan, P. R. Villeneuve, J. D. Joannopoulos, and E. F. Schubert. High extraction efficiency of spontaneous emission from slabs of photonic crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 78(17) :3294–3297, Apr 1997.
- I. Friedler, P. Lalanne, J. P. Hugonin, J. Claudon, J. M. Gérard, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Efficient photonic mirrors for semiconductor nanowires. *Opt. Lett.*, 33(22) :2635–2637, 2008.
- I. Friedler, C. Sauvan, J. P. Hugonin, P. Lalanne, J. Claudon, and J. M. Gérard. Solid-state single photon sources : the nanowire antenna. *Opt. Express*, 17(4) :2095–2110, 2009.
- D. Fuhrmann, C. Netzel, U. Rossow, A. Hangleiter, G. Ade, and P. Hinze. Optimization scheme for the quantum efficiency of gainn-based green-light-emitting diodes. *Applied Physics Letters*, 88 :071105, 2006.
- T. Fujii, Y. Gao, R. Sharma, E. L. Hu, S. P. DenBaars, and S. Nakamura. Increase in the extraction efficiency of gan-based light-emitting diodes via surface roughening. *Applied Physics Letters*, 84(6) :855–857, 2004.
- M. Fujita, S. Takahashi, Y. Tanaka, T. Asano, and S. Noda. Simultaneous inhibition and redistribution of spontaneous light emission in photonic crystals. *Science*, 308(5726) :1296–1298, 2005.
- F. Glas. Critical dimensions for the plastic relaxation of strained axial heterostructures in free-standing nanowires. *Phys. Rev. B*, 74(12) :121302, Sep 2006.
- J. Gómez-Rivas, O. L. Muskens, M. T. Borgström, S. L. Diedenhofen, and E. P. A. M. Bakkers. *Optical Anisotropy of Semiconductor Nanowires*, chapter 6, pages 127–145. 2008.
- N. Gregersen, T. R. Nielsen, J. Claudon, J.-M. Gérard, and J. Mørk. Controlling the emission profile of a nanowire with a conical taper. *Opt. Lett.*, 33(15) :1693–1695, 2008.
- B. Hahn. New developments for high power leds. In *FORUM LED LYON France*, 2009.
- A. L. Henneghien, S. Fichet, Y. Désières, B. Gayral, and J. M. Gérard. Simulation of hexagonal nanowire waveguiding properties. In *International Conference on near-field optics, nanophotonics and related techniques*, volume 10, 2008.
- A. L. Henneghien, Y. Désières, B. Gayral, and J. M. Gérard. Guiding and light emission properties of nanowire arrays. In *International Photonic and Electromagnetic Crystal Structures Meeting*, volume 8, 2009a.
- A.-L. Henneghien, B. Gayral, Y. Désières, and J. M. Gérard. Simulation of waveguiding and emitting properties of semiconductor nanowires with hexagonal or circular sections. *J. Opt. Soc. Am. B*, 26(12) :2396–2403, 2009b.
- S. Hersee, M. Fairchild, A. Rishinaramangalam, M. Ferdous, L. Zhang, P. Varangis, B. Swartzentruber, and A. Talin. Gan nanowire light emitting diodes based on templated and scalable nanowire growth. *Electronics Letters*, 45(1) :75–76, 2009.
- S. D. Hersee, X. Sun, , and X. Wang. The controlled growth of gan nanowires. *Nano Letters*, 6(8) :1008–1011, 2006.

- S. Huart. *Polarisation de la lumiere*. 1994.
- C. J. Humphreys. Solid-state lighting. *MRS bulletin*, 33 :459–470, 2008.
- E.-S. Jang, J. Y. Bae, J. Yoo, W. I. Park, D.-W. Kim, G.-C. Yi, T. Yatsui, and M. Ohtsu. Quantum confinement effect in $\text{ZnO}/\text{Mg}_{0.2}\text{Zn}_{0.8}\text{O}$ multishell nanorod heterostructures. *Applied Physics Letters*, 88(2) : 023102, 2006.
- J.-M. Jang, J.-Y. Kim, and W.-G. Jung. Synthesis of ZnO nanorods on GaN epitaxial layer and Si (100) substrate using a simple hydrothermal process. *Thin Solid Films*, 516(23) :8524 – 8529, 2008.
- J. C. Johnson, H. Yan, P. Yang, and R. J. Saykally. Optical cavity effects in ZnO nanowire lasers and waveguides. *The Journal of Physical Chemistry B*, 107(34) :8816–8828, 2003.
- S. Johnson and J. Joannopoulos. Block-iterative frequency-domain methods for Maxwell's equations in a plane-wave basis. *Opt. Express*, 8(3) :173–190, 2001.
- S. Kasap and P. Capper, editors. *Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials*. Springer, 2007.
- S. Keller, C. Schaake, N. A. Fichtenbaum, C. J. Neufeld, Y. Wu, K. McGroddy, A. David, S. P. DenBaars, C. Weisbuch, J. S. Speck, and U. K. Mishra. Optical and structural properties of GaN nanopillar and nanostripe arrays with embedded InGaN/GaN multi-quantum wells. *Journal of Applied Physics*, 100(5) :054314, 2006.
- A. Kikuchi, M. Kawai, M. Tada, and K. Kishino. InGaN/GaN multiple quantum disk nanocolumn light-emitting diodes grown on (111) Si substrate. *Japanese Journal of Applied Physics*, 43(12A) :L1524–L1526, 2004.
- A. Kikuchi, M. Tada, K. Miwa, and K. Kishino. Growth and characterization of InGaN/GaN nanocolumn led. *Quantum Dots, Particles, and Nanoclusters III*, 6129(1) :612905, 2006.
- H.-M. Kim, T. W. Kang, and K. S. Chung. Nanoscale ultraviolet-light-emitting diodes using wide-bandgap gallium nitride nanorods. *Advanced Materials*, 15(7-8) :567–569, 2003.
- H.-M. Kim, Y.-H. Cho, H. Lee, S. I. Kim, S. R. Ryu, D. Y. Kim, T. W. Kang, and K. S. Chung. High-brightness light emitting diodes using dislocation-free indium gallium nitride/gallium nitride multiquantum-well nanorod arrays. *Nano Letters*, 4(6) :1059–1062, 2004.
- J.-Y. Kim, M.-K. Kwon, K.-S. Lee, S.-J. Park, S. H. Kim, and K.-D. Lee. Enhanced light extraction from GaN -based green light-emitting diode with photonic crystal. *Applied Physics Letters*, 91(18) :181109, 2007.
- A. Kirchner, K. Busch, and C. M. Soukoulis. Transport properties of random arrays of dielectric cylinders. *Phys. Rev. B*, 57(1) :277–288, Jan 1998.
- K. Kishino, A. Kikuchi, M. Yoshizawa, N. Fujita, K. Kushi, and H. Sasamoto. High-speed GaN growth and compositional control of GaInAlN superlattice quasi-ternary compounds by rf-radical source molecular beam epitaxy. *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 4(3) :550–556, 1998.
- K. Kishino, A. Kikuchi, H. Sekiguchi, and S. Ishizawa. InGaN/GaN nanocolumn LEDs emitting from blue to red. *Gallium Nitride Materials and Devices II*, 6473(1) :64730T, 2007.
- T. Kouno, K. Kishino, K. Yamano, and A. Kikuchi. Two-dimensional light confinement in periodic InGaN/GaN nanocolumn arrays and optically pumped blue stimulated emission. *Opt. Express*, 17(22) :20440–20447, 2009.
- M. Krames, O. Shchekin, R. Mueller-Mach, G. Mueller, L. Zhou, G. Harbers, and M. Craford. Status and future of high-power light-emitting diodes for solid-state lighting. *Display Technology, Journal of*, 3(2) :160–175, 2007.

- M. R. Krames, M. Ochiai-Holcomb, G. E. Höfler, C. Carter-Coman, E. I. Chen, I.-H. Tan, P. Grillot, N. F. Gardner, H. C. Chui, J.-W. Huang, S. A. Stockman, F. A. Kish, M. G. Craford, T. S. Tan, C. P. Kocot, M. Hueschen, J. Posselt, B. Loh, G. Sasser, and D. Collins. High-power truncated-inverted-pyramid (al_xga_{1-x})_{0.5}in_{0.5}p/gap light-emitting diodes exhibiting [greater-than] 50% external quantum efficiency. *Applied Physics Letters*, 75(16) :2365–2367, 1999.
- T. F. Krauss. Why do we need slow light ? *nature photonics*, 2 :448–450, 2008.
- V. Krishnamurthy and B. Klein. Theoretical investigation of metal cladding for nanowire and cylindrical micropost lasers. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 44(1) :67–74, Jan. 2008.
- T. Kuykendall, P. J. Pauzauskie, Y. Zhang, J. Goldberger, D. Sirbully, J. Denlinger, and P. Yang. Crystallographic alignment of high-density gallium nitride nanowire arrays. *Nature Materials*, 3 :524–528, 2004.
- T. Kuykendall, P. Ulrich, S. Aloni, and P. Yang. Complete composition tunability of ingan nanowires using a combinatorial approach. *Nature Materials*, 6 :951 – 956, 2007.
- La commission des communautés européennes. Règlement (ce) no 244/2009 de la commission. *Journal officiel de l'Union européenne*, 76(3), mars 2009.
- L. Largeau, D. L. Dheeraj, M. Tchernycheva, G. E. Cirlin, and J. C. Harmand. Facet and in-plane crystallographic orientations of gan nanowires grown on si(111). *Nanotechnology*, 19(15) :155704, 2008.
- C.-H. Lee, J. Yoo, Y. J. Hong, J. Cho, Y.-J. Kim, S.-R. Jeon, J. H. Baek, and G.-C. Yi. Gan/ingan/gan/zno nanoarchitecture light emitting diode microarrays. *Applied Physics Letters*, 94(21) :213101, 2009a.
- M. Lee, J.-H. Cheng, Y. Lee, D. Seghete, S. George, J. Schlager, K. Bertness, and N. Sanford. Packaging and interconnect technologies for the development of gan nanowire-based light emitting diodes. pages 843 –847, may 2009b.
- R. K. Lee, Y. Xu, and A. Yariv. Modified spontaneous emission from a two-dimensional photonic bandgap crystal slab. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(8) :1438–1442, 2000.
- Z. Liu, K. Wang, X. Luo, and S. Liu. Precise optical modeling of blue light-emitting diodes by monte carlo ray-tracing. *Opt. Express*, 18(9) :9398–9412, 2010.
- J. M. Lourtioz, H. Bensity, V. Berger, J. M. Gérard, D. Maystre, and A. Tchernokov. *Les cristaux photoniques ou la lumière en cage*. 2003.
- A. Ludwig. Nanoguides semi-conducteur-métal, applications aux diodes électroluminescentes à nanofils. Master's thesis, Université Joseph Fourier, 2009.
- Lumileds. *Understanding Power LED Lifetime Analysis*.
- S. Maier. *Plasmonics : Fundamentals and Applications*. 2007.
- R. A. Mair, K. C. Zeng, J. Y. Lin, H. X. Jiang, B. Zhang, L. Dai, A. Botchkarev, W. Kim, H. Morkoç, and M. A. Khan. Optical modes within iii-nitride multiple quantum well microdisk cavities. *Applied Physics Letters*, 72(13) :1530–1532, 1998.
- A. V. Maslov and C. Z. Ning. Reflection of guided modes in a semiconductor nanowire laser. *Applied Physics Letters*, 83(6) :1237–1239, 2003.
- A. V. Maslov and C. Z. Ning. Far-field emission of a semiconductor nanowire laser. *Opt. Lett.*, 29(6) :572–574, 2004.
- A. V. Maslov, M. I. Bakunov, and C. Z. Ning. Distribution of optical emission between guided modes and free space in a semiconductor nanowire. *Journal of Applied Physics*, 99(2) :024314, 2006.

- E. Matioli, B. Fleury, E. Rangel, E. Hu, J. Speck, and C. Weisbuch. Measurement of extraction and absorption parameters in gan-based photonic-crystal light-emitting diodes. *Journal of Applied Physics*, 107(5) :053114, 2010a.
- E. Matioli, E. Rangel, M. Iza, B. Fleury, N. Pfaff, J. Speck, E. Hu, and C. Weisbuch. High extraction efficiency light-emitting diodes based on embedded air-gap photonic-crystals. *Applied Physics Letters*, 96(3) :031108, 2010b.
- P. Mottier. *Les diodes électroluminescentes pour l'éclairage*. Lavoisier, 2008.
- O. L. Muskens, M. T. Borgström, E. P. A. M. Bakkers, and J. G. Rivas. Giant optical birefringence in ensembles of semiconductor nanowires. *Applied Physics Letters*, 89(23) :233117, 2006.
- A. M. C. Ng, Y. Y. Xi, Y. F. Hsu, A. B. Djurisić, W. K. Chan, S. Gwo, H. L. Tam, K. W. Cheah, P. W. K. Fong, H. F. Lui, and C. Surya. Gan/zno nanorod light emitting diodes with different emission spectra. *Nanotechnology*, 20(44) :445201, 2009.
- T. Nobis and M. Grundmann. Low-order optical whispering-gallery modes in hexagonal nanocavities. *Phys. Rev. A*, 72(6) :063806, Dec 2005.
- T. Nobis, E. M. Kaidashev, A. Rahm, M. Lorenz, and M. Grundmann. Whispering gallery modes in nanosized dielectric resonators with hexagonal cross section. *Physical Review Letters*, 93(10) :103903, 2004.
- S. Noda, M. Fujita, and T. Asano. Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities. *Nat Photon*, 1 :449–458, 2007.
- Y.-R. Nowicki-Bringuier, J. Claudon, C. Böckler, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Morand, A. Forchel, and J. M. Gérard. High q whispering gallery modes in gaas/alas pillar microcavities. *Opt. Express*, 15(25) :17291–17304, 2007.
- D. Ochoa. *Diodes électrluminescentes planaires à haut rendement d'extraction lumineuse*. PhD thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2001.
- E. D. Palik. *Handbook of optical constants of solids*. 1998.
- W. Park, G.-C. Yi, M. Kim, and S. Pennycook. Zno nanoneedles grown vertically on si substrates by non-catalytic vapor-phase epitaxy. *Advanced Materials*, 14 :1841–1843, 2002.
- K. Petermann. Calculated spontaneous emission factor for double-heterostructure injection lasers with gain-induced waveguiding. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 15(7) :566–570, Jul 1979.
- J. Phillips, M. Coltrin, M. Crawford, A. Fischer, M. Krames, R. Mueller-Mach, G. Mueller, Y. Ohno, L. Rohwer, J. Simmons, and J. Tsao. Research challenges to ultra-efficient inorganic solid-state lighting. *Laser & Photonics Review*, 1(4) :307–333, 2007.
- N. Pousset. *Caracterisation du rendu des couleurs des nouvelles sources : les diodes electroluminescentes*. PhD thesis, Conservatoire national des arts et metiers, 2009.
- F. Qian, S. Gradecak, Y. Li, C.-Y. Wen, and C. Lieber. Core/multishell nanowire heterostructures as multicolor, high-efficiency light-emitting diodes. *Nano Letters*, 5(11) :2287–2291, 2005.
- A. Rahman and S. Kumar. New approach for optical resonances in dielectric circular cylinder based on whispering gallery mode. volume 6619, page 66192A. SPIE, 2007.
- B. Rau, P. Waltereit, O. Brandt, M. Ramsteiner, K. H. Ploog, J. Puls, and F. Henneberger. In-plane polarization anisotropy of the spontaneous emission of m-plane gan/(al,ga)n quantum wells. *Applied Physics Letters*, 77 (21) :3343–3345, 2000.

- S. Raychaudhuri and E. T. Yu. Calculation of critical dimensions for wurtzite and cubic zinc blende coaxial nanowire heterostructures. *Journal of the vacuum science and technology B*, 24(4) :2053–2059, 2006.
- L. Rayleigh. The problem of the whispering gallery. *Philosophical Magazine*, 20 :1001–1004, 1910.
- M. Richard. *Quasi-condensation de polaritons sous excitation incohérente dans les microcavités II-VI à base de CdTe*. PhD thesis, Université Joseph Fourier, 2004.
- H. Rigneault, F. Lemarchand, A. Sentenac, and H. Giovannini. Extraction of light from sources located inside waveguide grating structures. *Opt. Lett.*, 24(3) :148–150, 1999.
- H. Rigneault, F. Lemarchand, and A. Sentenac. Dipole radiation into grating structures. *J. Opt. Soc. Am. A*, 17 (6) :1048–1058, 2000.
- H. Rigneault, J. Broudic, B. Gayral, and J. M. Gérard. Far-field radiation from quantum boxes located in pillar microcavities. *Opt. Lett.*, 26(20) :1595–1597, 2001.
- K. I. Rusakov, A. A. Gladyschuk, Y. P. Rakovich, J. F. Donegan, S. Balakrishnan, Y. Guniko, T. S. Perova, and R. A. Moore. Whispering gallery mode emission from microtube cavity. *Optics and Spectroscopy*, 103(3) : 360, 2007.
- L. Sapienza, H. Thyrestrup, S. Stobbe, P. D. Garcia, S. Smolka, and P. Lodahl. Cavity quantum electrodynamics with anderson-localized modes. *Science*, 327(5971) :1352–1355, 2010.
- H. Schömiß, S. Halm, A. Forchel, G. Bacher, J. Off, and F. Scholz. Probing individual localization centers in an *ingan/gan* quantum well. *Phys. Rev. Lett.*, 92(10) :106802, 2004.
- U. Schröter and A. Dereux. Surface plasmon polaritons on metal cylinders with dielectric core. *Phys. Rev. B*, 64(12) :125420, Sep 2001.
- E. F. Schubert. *Light-Emitting Diodes*. Cambridge University Press, 2006.
- H. Sekiguchi, A. Kikuchi, and K. Kishino. Structural and optical properties of gan nanocolumns grown on (0001) sapphire substrates by rf-plasma-assisted molecular-beam epitaxy. *Journal of Crystal Growth*, 300 (1) :259 – 262, 2007.
- H. Sekiguchi, K. Kishino, and A. Kikuchi. Gan/algan nanocolumn ultraviolet light-emitting diodes grown on n-(111) si by rf-plasma-assisted molecular beam epitaxy. *Electronics Letters*, 44(2) :151–152, 17 2008.
- M. G. Silveirinha. Nonlocal homogenization model for a periodic array of ϵ -negative rods. *Physical Review E (Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics)*, 73 :046612, 2006.
- E. I. Smotrova and A. I. Nosich. Mathematical study of the two-dimensional lasing problem for the whispering-gallery modes in a circular dielectric microcavity. *Optical and Quantum Electronics*, 36 :213–221, 2004.
- A. W. Snyder and J. D. Love. *Optical waveguide theory*. Kluwer Academic Publishers, 2000a.
- A. W. Snyder and J. D. Love. *Optical waveguide theory*, chapter Fundamental properties of modes, pages 208–237. Kluwer Academic Publishers, 2000b.
- A. Sommerfeld. Über die ausbreitung der wellen in der drahtlosen telegraphie. *Ann. Phys.*, 28 :665–736, 1909.
- A. Taflov and S. C. Hagness. *Computational Electrodynamics*. Artech House Publishers, 2000.
- H. Taniyama and M. Notomi. S-matrix calculation of radiation characteristics from dipole oscillation in two-dimensional photonic crystal slabs. *Journal of Applied Physics*, 103(8) :083115, 2008.

- A. Umar, S. H. Kim, H. Lee, N. Lee, and Y. B. Hahn. Optical and field emission properties of single-crystalline aligned zno nanorods grown on aluminium substrate. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 41(6) :065412, 2008.
- K. J. Vahala. Optical microcavities. *Nature*, 424 :839–846, 2003.
- H. C. van de Hulst. *Light Scattering by Small Particles*. 1981.
- L. K. van Vugt, B. Zhang, B. Piccione, A. A. Spector, and R. Agarwal. Size-dependent waveguide dispersion in nanowire optical cavities : Slowed light and dispersionless guiding. *Nano Letters*, 9(4) :1684–1688, 2009.
- M.-Q. Wang, Y.-Z. Huang, Q. Chen, and Z.-P. Cai. Analysis of mode quality factors and mode reflectivities for nanowire cavity by fdtd technique. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 42(2) :146–151, Feb. 2006.
- J. A. E. Wasey and W. L. Barnes. Birefringence and light emission from the polymer led. *Synthetic Metals*, 111-112 :213 – 215, 2000a.
- J. A. E. Wasey and W. L. Barnes. Efficiency of spontaneous emission from planar microcavities. *Journal of Modern Optics*, 47 :725–741, 2000b.
- J. A. E. Wasey, A. Safonov, I. D. W. Samuel, and W. L. Barnes. Effects of dipole orientation and birefringence on the optical emission from thin films. *Optics Communications*, 183(1-4) :109 – 121, 2000.
- D. M. Whittaker and I. S. Culshaw. Scattering-matrix treatment of patterned multilayer photonic structures. *Phys. Rev. B*, 60(4) :2610–2618, 1999.
- J. J. Wierer, M. R. Krames, J. E. Epler, N. F. Gardner, M. G. Craford, J. R. Wendt, J. A. Simmons, and M. M. Sigalas. Ingan/gan quantum-well heterostructure light-emitting diodes employing photonic crystal structures. *Applied Physics Letters*, 84(19) :3885–3887, 2004.
- J. J. Wierer, A. David, and M. M. Megens. Iii-nitride photonic-crystal light-emitting diodes with high extraction efficiency. *Nat Photon*, 3 :163–169, 2009.
- D. S. Wiersma, P. Bartolini, A. Lagendijk, and R. Righini. Localization of light in a disorderedmedium. *Nature*, 390 :671–673, 1997.
- M. Willander, O. Nur, Q. X. Zhao, L. L. Yang, M. Lorenz, B. Q. Cao, J. Z. Pérez, C. Czekalla, G. Zimmermann, M. Grundmann, A. Bakin, A. Behrends, M. Al-Suleiman, A. El-Shaer, A. C. Mofor, B. Postels, A. Waag, N. Boukos, A. Travlos, H. S. Kwack, J. Guinard, and D. L. S. Dang. Zinc oxide nanorod based photonic devices : recent progress in growth, light emitting diodes and lasers. *Nanotechnology*, 20(33) :332001, 2009.
- E. Yablonovitch. Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics. *Phys. Rev. Lett.*, 58 (20) :2059–2062, May 1987.
- S.-H. Yang, M. L. Cooper, P. R. Bandaru, and S. Mookherjea. Giant birefringence in multi-slotted silicon nanophotonic waveguides. *Opt. Express*, 16(11) :8306–8316, 2008.
- Y.-D. Yang, Y.-Z. Huang, and Q. Chen. High-q tm whispering-gallery modes in three-dimensional micro-cylinders. *Physical Review A (Atomic, Molecular, and Optical Physics)*, 75(1) :013817, 2007. doi : 10.1103/PhysRevA.75.013817.
- K. Yashiro and S. Ohkawa. Boundary element method for electromagnetic scattering from cylinders. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 33(4) :383 – 389, apr 1985.
- T. Yatsui, J. Lim, M. Ohtsu, S. J. An, and G.-C. Yi. Evaluation of the discrete energy levels of individual zno nanorod single-quantum-well structures using near-field ultraviolet photoluminescence spectroscopy. *Applied Physics Letters*, 85(5) :727–729, 2004.

- K. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media. *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, 14(3) :302 –307, 1966.
- P. Yeh. *Optical waves in layered media*. 1988.
- H. Yoshikawa and S. Adachi. Optical constants of zno. *Japanese Journal of Applied Physics*, 36(Part 1, No. 10) :6237–6243, 1997.
- G. Yu, H. Ishikawa, T. Egawa, T. Soga, J. Watanabe, T. Jimbo, and M. Umeno. Polarized reflectance spectroscopy and spectroscopic ellipsometry determination of the optical anisotropy of gallium nitride on sapphire. *Japanese Journal of Applied Physics*, 36(Part 2, No. 8A) :L1029–L1031, 1997a.
- G. Yu, G. Wang, H. Ishikawa, M. Umeno, T. Soga, T. Egawa, J. Watanabe, and T. Jimbo. Optical properties of wurtzite structure gan on sapphire around fundamental absorption edge (0.78–4.77 ev) by spectroscopic ellipsometry and the optical transmission method. *Applied Physics Letters*, 70(24) :3209–3211, 1997b.
- H. Yuan and Y. Zhang. Preparation of well-aligned zno whiskers on glass substrate by atmospheric mocvd. *Journal of Crystal Growth*, 263(1-4) :119 – 124, 2004.
- U. Zehnder. Gainn leds : straight way for solid state lighting. In *Manufacturing LEDs for Lighting and Displays*, 2007.
- X. Zhang, X. Zhang, J. Xu, X. Shan, J. Xu, and D. Yu. Whispering gallery modes in single triangular zno nanorods. *Opt. Lett.*, 34(16) :2533–2535, 2009.
- G. Zissis. Technologie des diodes electroluminescentes : Les challenges pour l'avenir. In *Colloque éclairage*, Troyes, juillet 2007.

Résumé

Les diodes électroluminescentes (LEDs) bleues ou blanches actuelles sont constituées de couches épitaxiales planaires, essentiellement à base de GaN. Sans autres opérations technologiques, la réflexion totale interne aux interfaces réduit le nombre de photons extraits à quelques pourcents du nombre de photons émis. Cette thèse s'intéresse à un concept en rupture : les LEDs à nanofils GaN ou ZnO. Plus précisément elle vise à préciser l'intérêt de ces couches pour l'augmentation du rendement d'extraction. Nous nous sommes plus particulièrement intéressés à trois types de couches (taille des fils, arrangement), chacune mettant en jeu un processus d'extraction différent. La première géométrie, basée sur des fils relativement gros (rayons $\sim 50 - 100$ nm minimum) et distants vise à profiter des résonances ou du guidage optique pouvant exister au sein de chaque fil pour canaliser l'émission spontanée. Les coefficients de couplage de la couche active sur ces modes ainsi que la réflectivité des modes guidés en bout de fil ont notamment été évalués numériquement en fonction de la taille des fils. La seconde approche, issue de l'étude goniométrique de couches de fils MBE sur substrat de silicium, vise à profiter des propriétés d'indice effectif des couches de fils sublongueurs d'onde pour éviter le phénomène de réflexion totale à l'origine des faibles rendements d'extraction des couches planaires. Le modèle anisotrope numérique développé montre qu'un rendement d'extraction proche de 70% est envisageable sur ce type de couche épitaxiée sur silicium. Enfin la troisième approche, plus prospective, vise à initier une étude sur l'émission dans des réseaux de fils agencés périodiquement.

Mots-clefs : nanofils semiconducteurs, *GaN*, *ZnO*, diode électroluminescence, extraction lumineuse

Abstract

The current blue or white light-emitting diodes (LEDs) are constituted by planar layers of GaN. The use of the nanowires as active layer is a hard and new concept which brings numerous potential advantages and revolutionizes the rules of LED design. This thesis deals with the light emission and extraction of nanowire structures made of wide band gap semi-conductors such as GaN or ZnO. The issue is to understand and to optimize the processes of extraction with the aim of a LED use. We were more particularly interested in three nanowire organizations attractive for the extraction. The first concept concerns nanowires which are enough separated to be considered as isolated. The emission properties of these structures are mainly controlled by the competition between localized resonance (whispering gallery modes) and guided modes which channel and propagate the spontaneous emission towards the nanowires ends. Our second contribution concerns the study of ensembles of small dense nanowires. Goniometry experiments on GaN nanowires made by MBE put in evidence the interest of a nanowires modelling by an effective anisotropic medium. The simulations of the extraction of these devices on silicon substrate are very promising for the creation of efficient and low cost LEDs. Perspectives on nanowires use in periodic organized array so as to realize a photonic crystal are the third part of the thesis. A numerical model allowed suggesting rules of arrays design.

Keywords : semiconductor nanowires, *GaN*, *ZnO*, light-emitting diodes, light extraction.